N° d'enregistrement
au C.N.R.S.

T H E S E
D' U N I V E R S I T E

présentée

A LA FACULTE DES SCIENCES DE PARIS
Université de PARIS VI

par

Maria Luisa FERNANDEZ, née CALVO

pour obtenir

le grade de Docteur d'Université

-=-=-=-

Sujet de la thèse: ETUDE PAR DIFFUSION DE LA LUMIERE DE LA SILICE VITREUSE IRRADIEE AUX NEUTRONS

Soutenue le 5 Novembre 1971 devant la Commission d'examen

Monsieur M. FRANCON Président
Monsieur F. ABELES Examinateur
Monsieur E. PROD'HOMME Rapporteur
Madame A. WINTER)
Monsieur J. ROBREDO) Membres invités

N° d'enregistrement
au C.N.R.S.

T H E S E
D' U N I V E R S I T E

présentée

A LA FACULTE DES SCIENCES DE PARIS
Université de PARIS VI

par

Maria Luisa FERNANDEZ, née CALVO

pour obtenir

le grade de Docteur d'Université

Sujet de la thèse: ETUDE PAR DIFFUSION DE LA LUMIERE DE LA SILICE VITREUSE IRRADIEE AUX NEUTRONS

Soutenue le 5 Novembre 1971 devant la Commission d'examen

Monsieur M. FRANCON	Président
Monsieur F. ABELES	Examinateur
Monsieur E. PROD'HOMME	Rapporteur
Madame A. WINTER)	Membres invités
Monsieur J. ROBREDO)	

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

J'exprime ici ma profonde gratitude à Madame WINTER qui a bien voulu m'accueillir au Laboratoire des Verres pour préparer cette thèse.

Je suis très reconnaissante à Monsieur PROD'HOMME qui m'a toujours guidée au cours de cette étude.

Je remercie Monsieur FRANCON et Monsieur ABELES, Professeurs à l'Université de Paris VI, ainsi que Monsieur POBEDO, Chef du Service de Documentation à l'Institut du Verre, d'avoir accepté de faire partie du Jury.

Ce travail a été réalisé avec le concours du Commissariat à l'Energie Atomique. Il a été entrepris sur l'initiative de Monsieur GERARD auquel j'exprime ma reconnaissance ainsi qu'à Monsieur ELSTON, qui s'est chargé de faire irradier les échantillons.

Je voudrais remercier aussi Madame PROD'HOMME, ainsi que tout le personnel du Laboratoire des Verres pour l'aide qui m'a toujours été accordée.

Je remercie Madame NEROZZI ainsi que Madame CELLOC pour leur collaboration à la réalisation pratique de ce document.

Enfin je tiens à exprimer ma reconnaissance au Gouvernement Français qui m'a accordé une Bourse d'Etudes pour réaliser ce travail.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550028_0007

ETUDE PAR LA DIFFUSION LUMINEUSE DE LA SILICE VITREUSE IRRADIEE AUX NEUTRONS THERMIQUES

Table de Matières

I - INTRODUCTION

1.1. - Définition du sujet
1.2. - Technique proposée

II - CONSIDERATIONS THEORIQUES SUR L'IRRADIATION DES VERRES

2.1. - Effets de l'irradiation par les neutrons
2.2. - Guérison par traitement thermique

III - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

3.1. - Diffusion lumineuse
a) Rappel thèorique
b) Technique employée
3.2. - Transmission dans le visible
3.3. - Indice de réfraction

IV - PRESENTATION DES ECHANTILLONS

4.1. - Les différents types de silice vitreuse
4.1.1. - Modes de fabrication
4.1.2. - Propriétés physiques
4.1.3. - Description des échantillons
4.2. - Technique de l'irradiation
4.3. - Traitements thermiques de guérison

V - RESULTATS OBTENUS

5.1. - Dommages causés par les neutrons
5.1.1. - Mesure de la compaction
5.1.2. - Mesure de l'absorption optique

5.1.3. - Mesure de la diffusion lumineuse

5.1.3.1. - Mesure du rapport de Rayleigh

5.1.3.2. - Dissymétrie des indicatrices

5.2. - Guérison par traitement thermique

5.2.1. - Réduction de la compaction

5.2.2. - Réduction de la bande d'absorption

5.2.3. - Réduction de la diffusion Rayleight

5.2.4. - Réduction de la dissymétrie des indicatrices

VI - DISCUSSION

6.1. - Importance des défauts

6.2. - Guérison des défauts

VII - CONCLUSION

J'exprime ici ma profonde gratitude à Mme WINTER qui a bien voulu m'accueillir au Laboratoire des Verres pour préparer cette thèse, et accepté de faire partie du Jury.

Je suis très reconnaissante à M. PROD'HOMME qui m'a toujours guidée au cours de cette étude.

Que M. le Professeur ABELES, professeur à l'Université de Paris VI, qui a accepté d'assurer la présidence du Jury, reçoive ici ma profonde reconnaissance.

Je remercie Mme ROUSSEAU, Maître de Conférences à l'Université de Rouen, et M. ROBREDO, Redacteur en chef à l'Institut du Verre, qui ont accepté d'être membres du Jury.

Cette étude a été réalisée avec le concours du Commissariat à l'Energie Atomique. Elle a été entreprise à l'initiative de M. GERARD auquel j'exprime ma reconnaissance ainsi qu'à M. ELSTON, qui s'est chargé de faire irradier les échantillons.

Je voudrais remercier aussi Mme PROD'HOMME, ainsi que tout le personnel du Laboratoire des Verres pour l'aide qui m'ont toujours accordée.

Je remercie Mme NEROZZI, Mme CELEOC et Mlle DOBRICIC pour leur collaboration à la réalisation pratique de ce document.

Enfin je tiens à exprimer ma reconnaissance au Gouvernement Français qui m'a accordé une Bourse d'Etudes pour réaliser ce travail.

ETUDE PAR DIFFUSION DE LA LUMIERE DE LA SILICE VITREUSE IRRADIEE AUX NEUTRONS

I - INTRODUCTION

1.1. - Définition du sujet

Lorsqu'une substance est soumise aux effets d'une irradiation, il se produit en général des changements dans sa structure, et par conséquent, dans ses propriétés physiques.

L'étude de ces changements a été entreprise pour connaître la nature et l'importance des dommages causés par irradiation neutronique dans différents types de silice vitreuse et pour savoir aussi comment certains traitements thermiques peuvent guérir les régions endommagées. Nous voudrions étudier aussi l'influence de la teneur en impuretés diverses telles que groupements oxhydryles ou cations métalliques sur la formation et la guérison des dommages observés.

1.2. - Technique proposée

Nous nous proposons de faire cette étude en utilisant les phénomènes de diffusion de la lumière par un milieu hétérogène. En effet, les défauts induits par les neutrons se comportent comme des particules dispersées dont le nombre, la forme et la dimension peuvent être déterminées par différentes mesures de l'intensité de la lumière réellement diffusée par les hétérogénéités. Le niveau moyen de l'intensité diffusée dépend du nombre relatif des particules ; leur forme et leur dimension conditionnent la répartition angulaire de cette intensité.

L'étude de la diffusion de la lumière par un milieu transparent tel que la silice vitreuse, demande une technique spéciale qui n'a pas été très utilisée jusqu'à présent. On compte parmi les travaux qui ont été faits sur ce sujet ceux de R. D. MAURER (1) et M. GOLDSTEIN (2). C'est DEBYE en 1943 qui a jeté les bases théoriques d'une méthode de mesure de la diffusion de la lumière. Sa technique était au début appliquée à l'étude des macromolécules en solution ; cependant, d'autres domaines sont à présent considérés, tels que les suspensions de particules solides. Notre problème est assimilé à celui-ci, bien que la matrice aussi soit solide.

II - CONSIDERATIONS THEORIQUES SUR L'IRRADIATION

2.1. - Effets de l'irradiation par les neutrons :

L'interaction des neutrons avec la matière est, en général, de type nucléaire. Les effets de cette irradiation varient selon l'énergie des neutrons utilisés. Nous pouvons observer cinq phémonènes principaux.

a) Echauffement :

Toutes les formes de radiation qui passent à travers les solides (par conséquent, celles aussi du type neutronique), laissent une partie de leur énergie sous forme de chaleur, mais cet effet est transitoire, étant donné que la chaleur disparaît rapidement par conduction. Cependant il peut y avoir des effets semipermanents en raison de la nature localisée de la source de chaleur originelle. C'est le cas des neutrons qui sont des particules lourdes. Cette localisation fait que des températures relativement hautes peuvent être réalisées dans certaines conditons. Cet échauffement peut être la cause d'une réorganisation locale des atomes. On explique ainsi la formation des "pointes thermiques", qui sont des zones activées thermiquement et figées dans la structure.

b) Déplacement des atomes du réseau :

Par suite du choc direct des particules incidentes avec les atomes du réseau, ou, par suite d'une action indirecte due à des particules secondaires(fragments de fission), des atomes peuvent être éjectés de leurs sites, avec une telle énergie qu'ils ne peuvent plus revenir à leur position d'origine. Le réseau est alors endommagé : il y a d'une part formation de sites inoccupés (lacunes) et d'autre part déplacement d'atomes en position instable (interstitiels). Dans le cas du bombardement de la silice vitreuse par des neutrons, ces effets sont importants et ils aboutissant à une compaction qui

est mise en évidence par l'augmentation de la densité ou de l'indice de réfraction du verre.

Lorsque l'irradiation est faite avec des doses faibles ($\leq 10^{17}$ n/cm^2), ces effets peuvent être, soit réversibles, soit permanents. Ceci dépend de la teneur en impuretés du verre de silice.

c) Ionisation et excitation électronique :

Lorsqu'un atome est déplacé par une particule de haute énergie, son cortège électronique ne suit pas tout entier le mouvement : il y a ionisation de l'atome et libération d'électrons susceptibles de tomber dans les différents pièges que constituent les lacunes, les interstitiels ou les d'impuretés. Quand les électrons donc sont ainsi "piégés", de nouvelles fréquences de résonance se manifestent et donnent lieu à une bande d'absorption dans l'ultra violet et le visible. A cette bande est associée aussi une émission de fluorescence qui correspond à une restitution dégradée de l'énergie lumineuse absorbée. La restitution s'effectue toujours à une fréquence inférieure à celle de la radiation lumineuse excitatrice. (Fig. 1)

Dans le cas de la silice vitreuse l'irradiation neutronique provoque une coloration visible, bleue ou brune, qui dépend de la dose reçue et de la teneur en impuretés de l'échantillon. En particulier, c'est à la présence d'Al trivalent, qui ne se substitue pas exactement au Si tétravalent, qu'on attribue la bande d'absorption dans le visible (3).

L'émission de fluorescence associée à cette bande d'absorption s'effectue dans le rouge. On la voit très bien grâce à la trace rouge vif que laisse dans l'échantillon un faisceau de lumière monochromatique primaire de couleur verte ou bleue. La fluorescence est d'ailleurs plus intense en lumière incidente verte (546 mμ) qu'en lumière incidente bleue (463 mμ) ; le phénomène a déjà été signalé par R. D. MAURER (1).

d) Production d'atomes d'impuretés :

En général, les atomes d'impureté sont formés soit à la suite d'une transmutation, soit par des particules incidentes qui restent dans le réseau après l'irradiation.

Dans le cas de la silice les réactions qui peuvent se produire seraient de la forme :

$$^{16}O + n \rightarrow {}^{17}O$$

$$^{28}Si + n \rightarrow {}^{29}Si + \text{photon}$$

Or, aucune transmutation chimique ne se produit. Les neutrons qui sont des particules lourdes pénètrent à l'intérieur de la structure où ils créent des isotopes ayant une masse plus élevée que celle des atomes fondamentaux. Mais il n'y a pas des éléments nouveaux dans la réaction finale. Ceci est valable tant pour les neutrons lents que pour les neutrons rapides.

e) Production des ions chargés à haute énergie :

Cet effet est transitoire mais peut produire des phénomènes semipermanents : Fission nucléaire quand l'énergie est de l'ordre de 160 MeV ou réaction nucléaire, quand l'énergie cinétique ne dépasse pas 2 MeV. Ces effets sont négligeables dans le cas des neutrons (thermiques et rapides).

2.2. - Guérison par traitement thermique :

Les effets de l'irradiation neutronique dans la silice peuvent être réduits par une simple élévation de la température.

Deux types de réarrangements se produisent au cours de la guérison :

a) Réarrangement atomique

b) Réarrangement électronique

Aucune explication satisfaisante n'a encore été donnée qui permette de comprendre cette guérison.

Nous avons constaté les faits suivants :

Quand on recuit une silice irradiée, la compaction se relâche en raison de la restauration de l'équilibre structural.

En outre, les pointes thermiques responsables de la modification de la structure tendent à disparaître sous l'effet de la chaleur. Ce sont des régions métastables qui peuvent être réduites lorsque l'agitation thermique est suffisamment grande. Ainsi par traitement thermique l'équilibre thermodynamique du réseau est partiellement restauré. Dans ce cas on peut parler d'un phénomène réversible car les liaisons Si-O n'ont pas été atteintes. Mais ce comportement ne se présente pas toujours si, dans la structure on trouve des impuretés à l'état d'ions métalliques tels que Al^{+++} ou Na^{+}.

La dimension des pointes thermiques qui résultent de l'irradiation va diminuer progressivement au cours du traitement thermique, mais leur disparition ne sera complète qu'au moment où la température du traitement sera voisine de celle à laquelle les pointes thermiques se sont produites. A ce moment-là, ces dernières qui étaient comme figées dans la structure, commencent à disparaître.

Plusieurs auteurs ont déjà étudié le problème. BRUCKNER (4), suppose que la température de guérison est en relation avec la température de transformation des verres. En tout cas, cette température se place dans une zone proche du domaine de transformation soit 1.300°C. S. LUNGU (5) considère que l'état d'une silice irradiée est semblable à celui obtenu par un

refroidissement rapide à partir d'une température très élevée (1.500°C). Dans le cas d'une trempe à 1.600°C on avait déjà constaté une augmentation de l'indice de réfraction de la silice vitreuse (6). Mais S. LUNGU a établi une fonction f(C,T) où C désigne la concentration des défauts, et T la température absolue. Cette fonction est exprimée par :

$$f(C,T) = f(C,T_o) + \frac{\partial f(C,T)}{\partial T}(T - T_o) \quad (1)$$

où : $-\frac{\partial f(C,T)}{\partial T}$ représente l'entropie d'activation

Cette expression rappelle celle qui correspond à la variation thermique du volume dans un solide.

$$V = V_o + \alpha(T - T_o)$$

où : $\alpha = -\frac{\partial V}{\partial T}$ correspondrait à l'entropie d'activation représentée dans (1), c'est à dire le gradient thermique de la fonction f.

D'après W. PRIMAK (7), chaque défaut se guérit indépendamment des autres, suivant une loi de premier ordre :

$$-\frac{dp(E,T)}{dt} = r(E,T) \cdot p(E,t,T) \quad (2)$$

où : $r(E,T) = \nu e^{-E/KT}$

ν étant la "fréquence" et K la constante de Boltzmann

p (E,t,T) désigne le nombre de défauts

Les lois de la guérison semblent complexes. D'après les considérations théoriques précédentes nous pouvons distinguer certains facteurs dont dépend directement la guérison :

a) Nombre des défauts occasionnés par l'irradiation.
b) Concentration des défauts.
c) Température absolue du traitement.
d) Viscosité de la masse vitreuse, car dans le cas limite où

F (C,T) = F (0,1000°C) la fonction F représente l'énergie libre de l'écoulement visqueux de la silice vitreuse.
e) L'énergie libre d'activation qui diminue avec la densité.

En considérant seulement le spectre d'absorption dans le visible, on peut suivre le processus de guérison par la diminution progressive de la coloration des échantillons. L'absorption, qui était due au piégeage des électrons dans des niveaux métastables, disparaît au fur et à mesure que les électrons retrouvent leurs niveaux fondamentaux. La chaleur apporte l'énergie nécessaire pour que les électrons sautent d'un niveau à un autre dans lequel l'énergie est supérieure.

Un rayonnement lumineux intense peut aussi amener la guérison. On arrive à guérir une silice irradiée en l'éclairant par un faisceau provenant d'une lampe à vapeur de mercure avec un temps d'exposition relativement court. Ainsi des guérisons locales peuvent être produites.

III - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

La technique employée dans ce travail pour contrôler l'importance des dommages causés par l'irradiation est celle de la diffusion Rayleigh. Par ailleurs nous avons utilisé deux techniques auxiliaires : la spectrophotométrie et la réfractométrie, pour lesquelles, à cause de la forme imposée aux échantillons, nous n'avons pas pu obtenir la précision maximale.

3.1. - Diffusion lumineuse :

a) Rappel théorique :

L'intensité lumineuse globalement diffusée par une particule est égale au carré moyen de l'amplitude du vecteur électrique correspondant au moment induit par le champ électrique associé au rayonnement lumineux polarisé verticalement.

Cette intensité diffusée est égale à :

$$I = \frac{16\pi^4}{\lambda^4 r^2} \mu^2 I_o \qquad (1)$$

où : $\mu = \frac{n^2 - n_o^2}{4\pi} \frac{1}{N}$: (polarisabilité de la particule)

r : rayon de la particule

I_o : intensité incidente

λ_o : longueur d'onde de la lumière incidente

Cette expression est appliquable lorsque les particules sont suffisamment petites ($r < \lambda/20$), et qu'elles ne subissent pas d'interactions entre elles.

Ce qui nous intéresse dans l'éxpression (1) ce n'est pas seulement I_o mais le rapport de Rayleigh défini par :

$$R_{90°} = \frac{\pi^2}{\lambda_o^4} \left(\frac{n^2 - n_o^2}{N}\right)^2 \qquad (2)$$

où n est l'indice de réfraction des particules en suspension
n_o est l'indice de réfraction de la matrice
et N le nombre de molécules par unité de volume

En désignant par dn/dC la variation de l'indice de réfraction de la particule en fonction de la concentration, on peut écrire :

$$R_{90°} = \frac{4\pi^2 n^2}{\lambda_o^4 N_A} \left(\frac{dn}{dC}\right)^2 M C \qquad (3)$$

où : M est la masse moléculaire et C la concentration

On voit donc que l'intensité diffusée est proportionelle à la masse moléculaire des particules en suspension et à la concentration des particules dans la matrice.

Cependant le rapport $R_{90°}$ ne fournit qu'une première approximation du degré d'hétérogénéité du milieu diffusant. On obtient d'avantage d'informations si l'on connaît aussi l'état de polarisation de la lumière diffusée et la répartition angulaire de son intensité.

En effet quand les particules sont plus grandes que $\lambda/20$ on commence à pouvoir observer des phénomènes d'interférences qui ont pour effet de diminuer l'intensité de la lumière diffusée à mesure qu'augmente l'ângle d'observation. Le rapport de l'intensité diffusée est donné alors, par une expression de la forme :

$$R(\Theta) = R(0) \frac{1 + \cos^2\Theta}{2} P(\Theta) \qquad (4)$$

Dans celle-ci P(θ)est une fonction égale à 1 pour θ = 0, mais P (θ) peut être développée en série, et l'on pourra considérer seulement les deux premiers termes du développement à condition que l'angle d'observation soit suffisamment faible et les dimensions des particules assez petites.

$$P(\theta) = 1 - \frac{h^2 \rho^2}{3} + \frac{h^4 \rho^4}{5} \qquad (5)$$

où : $h = \frac{4\pi \sin \theta/2}{\lambda}$

ρ : étant le rayon d'une particule sphérique *)

Dans ces conditions l'intensité diffusée P (θ) décroît linéairement en fonction de $\sin^2 \theta/2$.

Pour en caractériser la pente on considère en pratique un nombre, rapport arbitraire de dissymétrie qui correspond aux directions de 45° et de 135°. **)

Le rapport $\sigma = {}^{I}45°/{}^{I}135°$ dépend de la dimension et de la forme des particules diffusantes. Quand la dimension L des particules est inférieure à λ/20 il n'y a pas de dissymétrie : σ= 1. Lorsque L dépasse λ/10, une dissymétrie commence à apparaître rapidement (σ >1).

Dans le cas de particules sphériques, L désigne le diamètre. Si les particules sont allongées en forme de bâtonnets, L désigne la plus grande dimension, c'est à dire, la longueur moyenne.

---

*) Comme en général les particules sont orientées au hasard, on doit considérer que la dimension ρ qui intervient ici est le rayon de giration défini par l'expression : $\Sigma \overline{Z}_i^2 = N\bar{\rho}^2/3$, où Z_i est la distance d'un point quelconque de la particule au centre de gravité.

**) La dissymétrie σ est différente si elle est mesurée en considérant la composante H_h au lieu de V_v. A ce sujet on peut définir un autre critère par le rapport D = dissymétrie de H_h / dissymétrie de V_v pour connaître le degré d'anisotropie des centres diffusants.

b) Techniques employées :

1) Photo - Conio - Diffusomètre :

Cet appareil permet de tracer les indicatrices de la diffusion lumineuse. Les échantillons utilisés sont des cylindres polis, immergés dans une cuve contenant du benzène. A l'intérieur de la cuve un système optique tournant autour de l'échantillon reçoit la lumière diffusée sous des angles compris entre 30° et 150° de la direction du faisceau lumineux primaire.

Deux filtres, respectivement vert et bleu, permettent d'isoler les deux longueurs d'onde 436 mμ et 546 mμ, et d'obtenir ainsi deux séries de mesures parallèles.

L'appareil comporte un polariseur sur le faisceau primaire, de sorte qu'il permet de tracer deux indicatrices. La première obtenue en polarisation verticale est la somme de deux composantes : $I_v = V_v + H_v$, V_v : composante verticale et H_v : composante horizontale. Alors que la seconde obtenue en polarisation horizontale donne la somme : $I_h = V_h + H_h$, V_h : composante verticale et H_h : composante horizontale.

La lumière diffusée par l'échantillon tombe sur une cellule photoélectrique qui mesure l'intensité lumineuse. La quantité de lumière globalement diffusée est évaluée par rapport à un échantillon préalablement étalonné.

La silice vitreuse non irradiée présente une diffusion Rayleigh très faible : aussi un problème sérieux se pose pour mesurer les échantillons irradiés, car le photo-goniodiffusomètre ne peut pas être muni de filtre, ni d'analyseur sur le faisceau diffusé à cause de l'absorption trop forte qui en résulterait.

Dans ces conditions l'intensité lumineuse brute qu'on mesure n'est pas de la lumière diffusée proprement dite : En effet, en polarisation verticale l'indicatrice I_v est égale à la somme $V_v + H_v + D + F$. C'est à dire qu'elle contient, en plus des deux composantes V_v et H_v, deux termes parasites de lumière non polarisée qui sont dus respectivement à la fluorescence F et à la diffusion macroscopique de gros défauts D. Les mêmes termes parasites existent aussi en polarisation horizontale et ils s'ajoutent aux composantes V_h et H_h de l'indicatrice: I_h est égale à la somme $V_h + H_h + D + F$.

En faisant la différence des deux lectures : $I_v - I_h$, on élimine donc en principe la contribution de la fluorescence et de la fausse diffusion. On obtient ainsi : $V_v - H_h$, puisque les composantes V_h et H_v s'éliminent aussi par différence.

Enfin pour déterminer la composante V_v, il faut mesurer H_h séparément. Cette mesure a été faite dans le cas particulier de la lumière diffusée à 90° à l'aide d'un autre appareil équipé spécialement à cet effet.

2) Diffusomètre à faisceaux rectangulaires :

Le diffusomètre à faisceaux rectangulaires permet une mesure plus précise du rapport de Rayleigh, mais à l'angle d'observation de 90° seulement (9). Il a été utilisé pour compléter les résultats fournis par le photo-goniodiffusomètre. La source est une lampe à vapeur de mercure HBO 200, dont on isole les raies verte et bleue par des filtres interférentiels. Les échantillons sont immergés dans une cuve optique contenant du benzène. Un filtre indentique à celui qui est disposé sur le faisceau primaire est placé sur le faisceau diffusé ainsi qu'un système polarisant la lumière. On peut ainsi d'une part éliminer la fluorescence qui n'est pas polarisée (une certaine partie l'est toujours), et d'autre part séparer les composantes V_v et H_v de la lumière diffusée proprement dite.

En lumière incidente polarisée verticalement, on mesure V_v avec l'analyseur en position verticale et H_v quand l'analyseur est en position horizontale. Le taux de dépolarisation H_h/V_v permet de déterminer H_h et de calculer la vraie valeur de la composante V_v à 90°. Cette détermination permet de calibrer, avec une meilleure précision, les courbes indicatrices fournies par le goniodiffusomètre.

D'autre part, l'utilisation d'une lampe très puissante, donne à cette méthode une meilleure sensibilité : c'est ainsi que le rapport R_g/R_e a été trouvé avec ce dispositif plus proche de sa valeur théorique qu'avec le photogoniodiffusomètre.

3.2. - Transmission dans le visible :

a) Spectrophotomètre :

L'obtention des spectres d'absorption a été faite à l'aide d'un spectrophotomètre Perkin-Elmer, permettant d'opérer dans le visible entre 350 mμ et 750 mμ.

Le fait de devoir effectuer ces mesures sur des échantillons de forme cylindrique principalement adaptés au goniodiffusomètre nous oblige à les immerger dans une cuve parallélépipédique contenant du benzène, et ceci ne nous a pas permis d'obtenir des spectres dans l'ultraviolet.

En fait, nous n'avons étudié l'absorption dans le visible que pour corriger les résultats obtenus en diffusion lumineuse pendant le traitement de guérison.

b) Correction de l'intensité de diffusion à partir des mesures d'absorption :

Un milieu présentant de nombreux centres de couleur, comme c'est le cas de la silice irradiée, devient fortement absorbant. La mesure de la diffusion lumineuse se complique

donc du fait qu'il faut tenir compte de l'absorption optique dans le calcul de l'intensité lumineuse, celle-ci étant affaiblie d'abord sur le trajet primaire, puis sur le trajet d'observation du volume diffusant. Deux corrections s'imposent :

1) La valeur vraie du rapport de Rayleigh R_{90} s'obtient en tenant compte de la lumière absorbée par les centres de couleur.

Le facteur de correction est calculé à partir de l'absorbance A (λ). A cette absorbance correspond un facteur de transmission T (%), selon la relation : A = colog T. Le facteur de correction à appliquer est alors égal à K = 100/T.

2) La dissymétrie de l'indicatrice de diffusion devrait aussi être corrigée parce que, en raison de l'absorption progressive de la lumière sur le faisceau primaire, le volume diffusant analysé par le goniodiffusomètre n'est pas uniformément éclairé. Aux fortes incidences la partie la plus brillante du volume diffusant est observée à travers une épaisseur de matière différente selon qu'on se trouve d'un côté ou de l'autre de l'observation normale à 90°. Il en résulte une dissymétrie parasite qui se manifeste par une augmentation de la diffusion lumineuse vers l'arrière.

3.3. - Indice de réfraction :

Le contrôle de la compaction a été fait par la mesure de l'indice de réfraction.

Pour cela nous nous sommes servi d'un réfractomètre d'Abbe classique ; mais puisque nous utilisons toujours des échantillons cylindriques l'éclairage a été fait avec une lampe au Na afin d'éliminer le plus possible les effets de réflexion parasite sur les parois des échantillons et d'obtenir ainsi une meilleure précision.

Le liquide intermédiaire utilisé pour les mesures était le benzène, dont l'indice est voisin de celui de la silice vitreuse.

Les lectures faites dans cet appareil permettent d'apprécier la quatrième décimale, mais l'erreur d'appréciation visuelle de l'opérateur est de l'ordre de : $\pm$ 0,000 2.

Ces mesures permettent de suivre la variation de la densification au cours du traitement thermique, étant donné que l'indice de réfraction n et la densité d sont liés par la relation de Lorenz -Lorenz :

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2}\frac{1}{d} = R_s$$ où la constante R_s désigne la réfractivité spécifique.

Dans le cas de la silice on arrive à la relation approximative $\Delta d \simeq 6\Delta n$

IV - PRESENTATIONS DES ECHANTILLONS

4.1. - Les différents types de silice vitreuse :

Les échantillons de silice vitreuse que nous avons examinés nous ont été fournis par la Société Héraeus.

Nous allons décrire les caractéristiques des différentes qualités de ces verres en fonction de leur mode de fabrication.

4.1.1. - Modes de fabrication :

On distingue deux principaux genres d'impuretés qui influencent la qualité des silices vitreuses :

a) Des impuretés métalliques chargées positivement.
b) Des groupements oxhydryles chargés négativement.

En reprenant la classification de P. BRUCKNER (4), nous pouvons définir quatre types de silice vitreuse :

Type I : Quartz fondu sous vide : (Qualité Infrasil)

Le verre est produit à partir du quartz naturel par fusion électrique sous vide ou sous atmosphère d'un gaz inerte. Il ne contient pratiquement pas de groupements OH^- environ 5 ppm ; par contre sa teneur en impuretés d'origine métallique est importante (Al^{3+}, Na^+ le plus souvent, entre 30 et 100 ppm).

Type II : Quartz fondu grain par grain : (Qualités Hérasil, Homosil et Ultrasil)

Le verre est obtenu à partir du quartz cristallin en poudre et par fusion à la flamme oxhydrique (méthode de Verneuil). Les impuretés métalliques y sont en moindre quantité que dans

l'Infrasil, mais la teneur en ions oxhydryles est très importante (150-400 ppm). La qualité courante est l'Hérasil. L'Homosil se distingue de l'Hérasil par une meilleure réalisation de l'homogénéité optique. Enfin, l'Ultrasil, a une très bonne transparence dans l'ultraviolet, en raison d'un traitement thermique spécial effectué sous atmosphère d'oxygène.

Type III : Silice synthétique : (Qualité Suprasil)

Elle est obtenue à partir de l'hydrolyse du $Si\,Cl_4$ à la flamme oxhydrique. Les impuretés métalliques sont négligeables, mais la teneur en OH^- est importante (jusqu'à 1200 ppm), on note aussi la présence du Cl, dans la proportion de 100 ppm.

Type IV : Silice synthétique anhydre : (Qualité Suprasil Wasserfrei)

Elle est obtenue par fusion du $Si\,Cl_4$ à la flamme sans vapeur d'eau. Comparée à celle du Suprasil, la teneur en OH^- devient négligeable (en dessous de 1 ppm), mais la teneur en chlore est doublée. (200 ppm)

4.1.2. - Propriétés physiques :

Le tableau I rassemble quelques valeurs caractéristiques des silices vitreuses à l'état non irradié : l'indice de réfraction n_D, la densité d ainsi que les rapports de Rayleigh R_g et R_e avec les dissymétries σ_g et σ_e correspondants, où les indices g et e représentant les mesures faites respectivement avec filtre bleu et filtre vert.

4.1.3. - Description des échantillons :

Pour effectuer les mesures de diffusion lumineuse les échantillons sont taillés sous forme d'un cylindre parfaitement poli, dont le diamètre est compris entre 14 mm et 16 mm, avec une hauteur d'environ 24 mm. Les deux bases ont reçu un bon poli optique en vue des mesures de l'indice de réfraction.

4.2. - Technique de l'irradiation :

L'irradiation a été faite au réacteur Mélusine du CEN Grenoble, où la pile atomique est du type piscine. Sa puissance est d'environ 2 Mégawatts. La température pendant l'irradiation était de l'ordre de 80°. Les échantillons ont été irradiés pendant une période de 15 jours. L'énergie cinétique des neutrons (thermiques et rapides) était comprise entre 1 et 14 MeV.

Les doses employées pour l'irradiation des échantillons sont comprises entre : $2,4.10^{17}$ n/cm^2 et 10.10^{17} n/cm^2. Ces valeurs représentent des flux intégrés de neutrons thermiques et rapides.

Flux des neutrons thermiques : Densité volumique des neutrons d'énergie inférieure à 0,4 eV multipliée par la vitesse 2,200 m/sec. La section efficace utilisée est prise à 2,200 m/sec.

Flux des neutrons rapides : Flux des neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV. La section efficace utilisée est une section moyenne sous le spectre correspondant à l'emplacement de la mesure. Le type de détecteur utilisé pour les neutrons thermiques est à base de Al-Co et pour les neutrons rapides de Ti. Le tableau II donne la dose l'irradiation reçue pour chaque échantillon de silice et la compaction $\Delta d/d$ correspondante.

Il faut souligner que les doses reçues sont légèrement différentes pour chaque échantillon. Ceci est dû au fait que pendant l'irradiation les échantillons occupent différentes positions à l'intérieur du container et qu'ils ne reçoivent pas exactement la même dose de rayonnement parce que le flux du réacteur n'est pas homogène et que de nombreuses réflexions interviennent.

4.3. - Traitements thermiques de guérison :

Pour les doses comprises entre 2,4 et 3,0 10^{17} n/cm^2 on a réalisé six traitements successifs de recuisson à des températures de 200°C, 400°C, 600°C, 800°C et 1000°C. Pour les doses comprises entre 3,0 10^{17} n/cm^2 et 10,0 10^{17} n/cm^2, nous avons réalisé un traitement supplémentaire de recuisson à 1200°C. Tous les traitements ont eu une durée de 24 heures et ils ont été effectués dans un four électrique dont la stabilisation était obtenue à $\pm$ 10°C.

Nous avons choisi une durée de recuisson assez longue pour être sûrs d'obtenir l'effet maximum, bien que l'on admette généralement que cette durée n'a pas une influence considérable sur le processus de la guérison.

V - RESULTATS OBTENUS

5.1. - Dommages causés par les neutrons :

Les dommages causés par les neutrons ont été mis en évidence par trois méthodes :

5.1.1. - Mesure de la compaction :

Pour les quatre types de silice vitreuse qui avaient subi des doses d'irradiation comprises entre 7 et $^{0}.10^{17}$ n/cm^2 nous avons trouvé un indice de réfraction pour la raie D égal à :

1) $n_D = 1,4596 \pm 0,0002$ (types I et II)

soit un accroissement à partir de l'indice initial :

$\Delta n = 1,4596 - 1,4585 = 0,0011$

2) $n_D = 1,4595 \pm 0,0002$ (types III et IV)

soit un accroissement à partir de l'indice initial :

$\Delta n = 1,4595 - 1,4584 = 0,0011$

Cela correspond d'après la relation approximative $\Delta d = 6\Delta n$ à une augmentation de la densité : $\Delta d = 0,0011 \times 6 = 0,0066$, c'est à dire à :

$$\frac{\Delta d}{d} = \frac{0,0066}{2,203} = 0,3\ \%$$

En ce qui concerne l'influence de la dose d'irradiation sur la compaction, nous n'avons pu faire les mesures que sur le type IV.

Nous avons trouvé une augmentation de l'indice de réfraction qui va de : $1,4584 \pm 0,0002$ pour une dose nulle, jusqu'à : $1,4600 \pm 0,0002$ pour une dose de 10.10^{17} n/cm^2. Cette variation est du type linéaire (Fig. 3) car l'intervalle

des doses considérées n'est pas très étendu. D'après les résultats obtenus par W. PRIMAK (10), la relation linéaire ne se conserve que jusqu'à 40.10^{18} n/cm^2. A partir de cette dose d'irradiation l'indice décroît lentement pour rejoindre aux environs de 250×10^{18} n/cm^2 la valeur de l'indice de réfraction du quartz cristallin soumis à la même dose. L'effet de compaction correspond à une trempe locale effectuée autour des pointes thermiques. Les résultats que nous avons obtenus sont en accord avec ceux, trouvés par d'autres auteurs. Ainsi par exemple J. S. LUKESH (11) trouve pour la raie jaune d^*, une augmentation de l'indice de 1,45706 à 1,46687, pour une silice irradiée à la dose de 2×10^{20} nvt.

5.1.2. - Mesure de l'absorption optique

Si on compare les spectres d'absorption des trois premiers types de silice vitreuse, tous soumis à une dose d'irradiation approximativement identique, on voit (Fig. 4) que la bande d'absorption devient plus importante lorsque la teneur en impuretés augmente et qu'en même temps elle se déplace vers des longueurs d'onde plus proches de l'ultra violet.

Ainsi pour le type I, le maximum d'absorption qui se trouve à 500 mμ est de 1,82. Pour le type II l'absorbance maximale est de 0,56 à 525 mμ et finalement pour le type III l'absorbance maximale est de 0,16 et se trouve à 615 mμ. Le spectre d'absorption de la silice de type IV présente une bande faible à 615 mμ dont l'importance augmente légèrement avec la dose d'irradiation (Fig. 5). Nous constatons notamment que l'absorbance maximale passe de 0,03 pour une dose de $2,3.10^{17}$ n/cm^2 à 0,10 pour une dose de $7,7.10^{17}$ n/cm^2 et finalement à 0,18 pour 10.10^{17} n/cm^2.

Le fait d'obtenir une absorbance aussi faible s'explique par le degré de pureté élevé de cette silice synthétique.

*) Longueur d'onde : 5876 Å

La hauteur de la bande d'absorption est en relation avec le nombre de centres de couleur créés par l'irradiation. Ceux-ci sont plus nombreux lorsqu'on est en présence d'une silice dont la teneur en impuretés est plus forte, c'est à dire, quand le nombre de niveaux métastables est plus grand.

Nos résultats sont en accord avec ceux de J. S. VAN WIERINGER (12) et R. A. WEEKS (13) qui trouvent pour les types I et II une bande d'absorption près de 550 mμ. STEVELS (14), indique que cette bande d'absorption dépend du type d'impuretés existant dans le réseau, spécialement de celles causées par la présence de Al^{+++}.

Quant aux types III et IV, les mêmes auteurs (11) et (12) trouvent une bande d'absorption près de 215 mμ et les échantillons mesurés ne sont pas colorés. Dans notre cas les échantillons sont légèrement bleutés en raison de la faible bande d'absorption observée à 615 mμ.

5.1.3. - Mesure de la diffusion lumineuse :

5.1.3.1. - Rapport de Rayleigh :

Pour une dose moyenne d'environ 9.10^{17} n/cm^2, nous avons trouvé que le rapport de Rayleigh passe dans le vert de 1.10^{-6} cm^{-1} correspondant à la silice non-irradiée à 10.10^{-6} cm^{-1} à l'état irradiée et dans le violet de 3.10^{-6} cm^{-1} correspondant à la silice non-irradiée à 24.10^{-6} cm^{-1} à l'état irradié . Les résultats concernant l'influence de la dose d'irradiation ne sont donnés que pour les silices des types III et IV. Le comportement observé peut cependant être appliqué aussi aux types I et II.

En fonction de la dose d'irradiation nous n'avons pas trouvé une relation linéaire comme R. D. MAURER (1) : Ceci tient sans doute au fait que la fluorescence n'est pas totalement éliminée dans les conditions de nos mesures et comme celle-ci augmente exponentiellemnt avec la dose d'irradiation on comprend que la variation linéaire est loin d'être vérifiée. Les valeurs obtenues par trois méthodes différentes sont rassemblées sur le tableau III. Sur la fig. 6 nous présentons deux séries de trois courbes pour λ = 546 mμ et λ = 436 mμ respectivement. Dans chaque série la fluorescence a été éliminée par les trois méthodes suivantes :

i) Les mesures correspondant à la première méthode ont été effectuées avec le photogoniodiffusomètre, où, comme nous l'avons déjà expliqué, une grande partie de la fluorescence ne peut pas être éliminée sans employer un filtre supplémentaire. En réalité elle est éliminée par simple effet de polarisation, en supposant que la fluorescence est entièrement dépolarisée. Mais ceci ne peut pas être admis théoriquement.

ii) Avec la deuxième méthode on arrive à une meilleure élimination de la fluorescence du fait que le diffusomètre à faisceaux rectangulaires est muni d'un analyseur.

iii) Enfin avec la troisième méthode la fluorescence est à la fois polarisée et filtrée.

Cependant, étant donné que la lumière polarisée avec filtre bleu est plus active que celle polarisée avec filtre vert, les courbures sont plus accusées dans le premier cas que dans le second.

La différence entre les mesures correspondant aux trois méthodes est plus importante lorsque la dose est plus forte, donc lorsque la fluorescence augmente.

Un problème se pose au sujet de la mesure du véritable rapport de Rayleigh, car la lumière émise par une substance fluorescente, excitée par un rayonnement dirigé, polarisé ou non, est en général partiellemnt polarisée. Ceci diminue donc la possibilité d'obtenir la vraie valeur du rapport de Rayleigh. C'est seulement dans le cas d'irradiation faible ou d'échantillons dont la teneur en impuretés est négligeable que la variation de R_{90} avec la dose pourrait être linéaire. Dans les autres cas, on sera toujours en présence d'une fluorescence légèrement polarisée difficile à éliminer.

5.1.3.2. - Dissymétrie des indicatrices :

La dissymétrie $\sigma = {}^{I}45°/I_{135°}$ des verres irradiés n'a pu être mesurée avec quelque précision que sur les types III et IV qui ne sont pas trop absorbants.

Etant donné que le flux neutronique émis par le réacteur a une orientation fixe par rapport à l'échantillon, les pointes thermiques pourraient aussi avoir une direction privilégiée au moment de l'irradiation. Or celle-ci serait indiquée par une variation de la dissymétrie quand l'échantillon change de position. C'est pourquoi nous avons mesuré les dissymétries σ_e et σ_g pour différentes orientations de l'échantillon, repérées par rapport à la direction fixe de propagation du faisceau primaire sur le goniodiffusomètre. Les résultats (Fig. 7) ne permettent pas de parler d'une variation de σ autre qu'aléatoire. Cela indique qu'il existe une isotropie dans le milieu : les pointes thermiques y sont orientées au hasard par suite des réflexions multiples des neutrons sur les parois.

Nous avons trouvé des valeurs de σ_e et σ_g qui sont respectivement égales à : 1,2 $\pm$ 0,1 et 1,4 $\pm$ 0,1. En introduisant ces valeurs dans le diagramme présenté par OSTER (Fig. 2) nous en avons déduit la forme et la dimension des dommages. Il s'agit de failles allongées de 1000 A° à 1500 A°, car le $\Delta\sigma = \sigma_g - \sigma_e = 0,2$ est trop grand pour qu'on ait affaire à des défauts sphériques, la pente de la courbe $\sigma = f (L/\lambda)$ correspondant aux bâtonnets varie moins rapidement que celle des deux autres courbes. C'est pourquoi les valeurs de σ doivent être rapportées à cette première courbe. Mais par cette méthode nous ne pouvons donner qu'une valeur moyenne de la longueur L. Car, si l'énergie d'irradiation neutronique varie de 1 MeV à 14 MeV, ceci implique que la section efficace varie aussi et que les pointes thermiques induites n'ont pas une forme et une dimension constantes. De toute manière la mesure de σ, obtenue à partir des indicatrices de diffusion (fig. 8) ne peut être réalisée que graphiquement. Ainsi la valeur L ne peut donner qu'une idée approchée de la dimension maximale d'un défaut induit.

Ces résultats sont pourtant en accord avec ceux qu'a publiés R. D. MAURER (1) qui pour une dissymétrie de 1,4 trouve une longueur des pointes thermiques de 1000 A°, et pour $\sigma = 1,8$ une longueur de 1300 A°, en utilisant une longueur d'onde excitatrice de 4358 Å (raie bleue).

La dissymétrie, (tant dans le vert : σ_e, que dans le violet : σ_g), ne semble pas dépendre sensiblement de la dose d'irradiation (Fig. 9), c'est du moins le cas des types III et IV irradiés de $2,9.10^{17}$ n/cm^2 à 10.10^{17} n/cm^2.

Ceci peut s'expliquer par le fait que l'irradiation utilisée a toujours été du type neutronique, c'est à dire, qu'on était toujours en présence d'un même type de pointes thermiques. L'augmentation de la dose d'irradiation ne fait qu'accroître le nombre des pointes thermiques, mais ceci n'a

aucune influence sur la dissymétrie qui est seulement liée à la forme et à la dimension des défauts induits.

Ceci pourrait être vérifié en mesurant la dissymétrie d'une silice vitreuse irradiée par un autre type de particule. Alors, la forme des pointes thermiques ne serait peut-être plus la même, du fait que l'énergie d'irradiation et la section efficace changeraient. Nous n'avons pas été en mesure de faire cet essai, et d'autre part nous n'avons pas trouvé de données dans la littérature à ce sujet, mais d'avance la conclusion nous paraît logique et en accord avec la théorie de l'irradiation.

5.2. - Guérison par traitement thermique :

En maintenant les échantillons à des températures de plus en plus élevées nous avons observé les phénomènes suivants :

5.2.1. - Réduction de la compaction :

Les valeurs obtenues pour l'indice de réfraction en fonction de la température du traitement thermique sont rassemblées dans le tableau IV. On trouve des valeurs légèrement plus fortes, pour les types I et II que pour les types III et IV. La différence est d'une unité de la quatrième décimale. Dans chaque cas les doses d'irradiation reçues par les échantillons sont comprises entre 8.10^{17} n/cm^2 et 10.10^{17} n/cm^2.

Après traitement thermique l'indice de réfraction diminue progressivement pour rejoindre à 1000°C la valeur correspondant à celle d'une silice non-irradiée (Fig. 10). Cette diminution de l'indice indique qu'il y a un relâchement de la compaction produite par l'irradiation. Ainsi la densité tend vers la valeur correspondant à l'état non-irradié, soit : 2,203 gr/cm^3 pour les types I et II et 2,201 gr/cm^3 pour les types III et IV.

Ce comportement observé dans les quatre types de silice ne semble donc pas dépendre du taux d'impuretés des verres.

Nos résultats sont en accord avec ceux obtenus par W. PRIMAK (10), qui retrouve les valeurs propres à la silice non-irradiée après un traitement effectué à 1000°C ou 1100°C, pour différents types de silice. Ce qui est remarquable dans les résultats obtenus c'est que pour éliminer une compaction importante, de l'ordre de 0,3 % (d'après les valeurs de $\Delta d/d$, tableau II), l'énergie interne accumulée dans la silice après l'irradiation, n'est pas très grande. C'est ce qu'avait déjà annoncé W. PRIMAK (10) et d'autres auteurs (5) et (15), qui ont essayé de donner une explication à ce phénomène. Pour arriver à le comprendre il faudrait faire une étude approfondie de la structure de la silice vitreuse avant et après irradiation.

D'après les courbes obtenues par réfractométrie, on peut considérer que la guérison apparente est complète après un traitement à la température de 1000°C. Mais si cela est vrai en ce qui concerne une réorganisation de la structure aboutissant à éliminer la compaction, on ne peut pourtant pas en conclure que la silice soit totalement guérie à cette température, car nous allons voir que d'autres propriétés n'ont pas atteint une stabilité définitive à 1000°C.

5.2.2. - Réduction de la bande d'absorption :

La bande d'absorption observée dans le visible après irradiation diminue progressivement au cours des traitements thermiques pour disparaître complètement à la température de 600°C. (Fig. 11)

Nous n'avons donné les résultats que pour les types I et II, car pour les types III et IV les bandes d'absorption sont très faibles.

Selon la teneur en impuretés de la silice, la diminution de l'intensité de la bande d'absorption se réalise d'une manière plus brusque lorsque les impuretés métalliques sont prépondérentes (cas du type I). A la température de 400°C les bandes d'absorption sont les mêmes pour tous les types de silice. Cela signifie que les modifications électroniques occasionnées par l'irradiation sont du même genre quelle que soit la teneur en impuretés.

Cependant le fait de trouver à 600°C une absorption nulle dans le visible ne veut pas dire que la guérison soit totale au niveau électronique. En effet, une émission de fluorescence reste encore décelable, qui indique que dans l'ultra-violet il existe toujours une bande d'absorption. Celle-ci ne disparaît qu'à partir de 800°C. Mais on ne peut pas affirmer que tous les niveaux électroniques soient alors complétement remplis. Il est probable que les niveaux les plus profonds ne se réarrangent qu'à des températures beaucoup plus élevées encore et sans doute à l'approche du domaine de transformation de la silice qui se situe entre 1200 et 1300°C.

5.2.3. - Réduction du rapport de Rayleigh :

Tous les résultats concernant la diffusion Rayleigh que présentent les quatre types de silice soumis à des traitement de guérison, sont consignés dans le tableau V pour la raie verte (λe) et dans le tableau VI pour la raie bleue (λg) : I_V désigne l'intensité à 90° par un faisceau incident polarisé verticalement, I_H désigne l'intensité diffusée à 90° par un faisceau incident polarisé horizontalement. Le rapport de diffusion brute R' est estimé correspondre à la différence $I_V - I_H$. Le coefficient K représente le facteur de correction d'absorbance qui doit être appliqué à R' pour obtenir le rapport de Rayleigh R.

Les diagrammes des figures 12a, 13a, 14a, 15a, montrent que les rapports de Rayleigh R_e et R_g diminuent rapidement dans tous les cas à mesure qu'augmente la température du traitement. Les quatre types de silice semblent avoir le même comportement.

Après traitement de 24 heures à 200°C le rapport de Rayleigh diminue assez peu, car les changements qui se produisent dans la structure à cette température ne sont pas encore très importants. A 400°C la diminution est déjà notable et l'on observe à partir de 600°C un changement de pente très net qui indique que des variations importantes se sont déjà produites ; enfin à 800°C le niveau de diffusion atteint est proche de sa valeur minimale. La réduction de la diffusion Rayleigh est en relation directe avec la guérison des régions endommagées : ces régions diminuent en nombre avec le traitement thermique et elles finissent par disparaître complétement à une température suffisamment élevée.

Si on observe qu'à 600°C la masse du verre a retrouvé son aspect transparent, cela signifie que la plupart des liaisons électroniques ont été rétablies dans leur état d'origine, mais cela ne veut pas dire que la guérison soit complète du point de vue atomique, car les traces laissées par les pointes thermiques s'effacent à plus haute température. La diffusion Rayleigh ne revient pas à son niveau initial avant traitement à 800°C.

A 1000°C la guérison contrôlée par le rapport de Rayleigh semble totale. Un traitement supplémentaire effectué à 1200°C à titre de vérification nous a montré que le niveau de la diffusion ne change plus. Les zones thermiquement activées ont disparu complétement : la diffusion lumineuse ne dépend plus que des défauts de fabrication du verre. Elle est très faible pour les types II, III et IV, mais elle reste un peu plus forte pour le type I sans doute à cause des défauts macroscopiques qu'il contient.

5.2.4. - Réduction de la dissymétrie des indicatrices :

Sur les tableaux V et VI nous indiquons la dissymétrie σ telle qu'elle est mesurée à partir des indicatrices et représentée sur les figures 13c, 14c et 15c. Ces résultats appellent une remarque : les indicatrices obtenues avec les échantillons de type I (Fig. 12b), sont fortement perturbées par la présence de défauts macroscopiques importants. Il s'agit de bulles de 1/10 millimètre, qui sont d'ailleurs plus gênantes en lumière verte qu'en lumière bleue. Elles se manifestent surtout quand les échantillons sont plus transparents. Dans ces conditions la détermination de σ n'a aucun sens physique et nous ne pouvons donner aucune valeur à la dimension L des dommages.

Par contre, pour les trois autres types de silice, les figures 13c, 14c et 15c montrent comment varient les dissymétries σ_e et σ_g au cours des divers traitements thermiques.

On remarque en particulier, que la dissymétrie ne change pratiquement pas au dessous de 600°, c'est au dessus qu'elle diminue rapidement et qu'elle tend vers une valeur très proche de l'unité après traitement à 1000°C. On observe sensiblement le même comportement en lumière verte et en lumière bleue. Ces séries de mesures parallèles ont été effectuées pour pouvoir évaluer $\sigma_g - \sigma_e$ avec une précision suffisante. On peut donc conclure que les zones compactées par les pointes thermiques ne sont guère influencées par les traitements effectués en dessous de 600°C. Vers 800°C la longueur L des régions compactées serait réduite de moitié. Cette guérison paraît cependant se réaliser d'une façon plus lente pour la silice naturelle (type II) que pour la silice synthétique (types III et IV). Pourtant, il existe une question non éclaircie dans les résultats concernant le type I. Etant donné que les bulles existaient avant

l'irradiation, on devrait trouver la même valeur de σ avant irradiation et après traitement thermique à température élevée. Or, lorsque la silice est traitée à 1000°C, nous n'arrivons pas à obtenir la valeur de σ correspondant à l'état non-irradié. On peut penser que l'irradiation a eu un effet beaucoup plus important sur ce type de silice que sur les autres et qu'il est plus difficile de le guérir complétement. Ceci pourrait s'expliquer par l'existence dans la structure d'ions Al^{+++} qui affaiblissent les liaisons Si-O au point que certaines d'entre elles arrivent à se rompre.

A l'appui de cette hypothèse on peut rappeler un travail de J. PRIMAK (16) dans lequel il est expliqué qu'une dilatation de la structure peut se produire dans les silices naturelles lorsqu'elles sont irradiées par des rayons γ, des rayons X ou des électrons, si leur teneur en impuretés est importante. Cette dilatation pourraît être due à une rupture des liaisons Al -O. Le même effet se produirait donc dans le cas d'une irradiation neutronique.

Il est important de souligner aussi que les mesures de dissymétrie sont en relation directe avec les défauts d'homogénéité de l'échantillon choisi. Ainsi, pour un même type de silice on peut trouver des rapports de dissymétrie différents selon l'état d'hétérogénéité de la masse du verre. C'est pourquoi il est indispensable d'effectuer de nombreuses mesures. Dans notre cas, le nombre d'échantillons était limité et ceci ne nous a pas permis d'obtenir une certitude suffisante dans les résultats. Mais il faut dire que dans le cas du type I l'échantillon mesuré avait un degré d'hétérogénéité très élevé, alors qu'un autre échantillon du même types avec un degré d'hétérogénéité moins important, aurait pu avoir un comportement plus proche de celui observé dans les autres types de silices examinés.

VI - DISCUSSION

6.1. - Importance des défauts

L'étude de la compaction de la silice vitreuse en fonction de la dose d'irradiation a été effectuée surtout par W. PRIMAK (17). Il a étudié aussi comment diminue la compaction après différents traitements thermiques (10), et il a observé qu'après un traitement à la température de 1000°C l'indice de réfraction et la densité des échantillons retrouvent les valeurs qu'ils présentaient dans le verre non-irradié. Mais de même que la disparition de la bande d'absorption et des phénomènes de fluorescence qui en dépendent ne permet pas d'affirmer que l'échantillon soit guéri ; de même le retour à une densité normale ne prouve pas que les zones compactées n'ont laissé aucune trace dans la structure vitreuse.

L'étude par diffusion Rayleigh de la dimension des hétérogénéités dans une structure a été commencée par R. D. MAURER (1) sur un seul type de silice vitreuse. Il a recherché l'influence des doses reçues sur la nature et sur la dimension des régions endommagées.

Etant donné que les silices vitreuses occupent un volume plus petit après l'irradiation, MAURER pense que les pointes thermiques sont entourées d'une zone compactée dont les caractéristiques sont comparables à celles d'un état de trempe, pour lequel il existe une certaine anisotropie en raison des effets photoélastiques observés. Le fait donc que les régions compactées sont en réalité anisotropes implique que la diffusion lumineuse mesurée est toujours supérieure à ce qu'elle devrait être, si l'on pouvait considérer ces défauts comme des centres diffusants isotropes.

L'étude que nous avons faite concerne plusieurs types de silice vitreuse contenant plusieurs taux d'impuretés diverses. Le type I contient une proportion importante d'impuretés métalliques, mais aussi un grand nombre de défauts macroscopiques qui malheuresement masquent les vraies valeurs de la diffusion lumineuse. Mais nous avons trouvé des rapports de Rayleigh à peu près identiques pour les trois autres types de silice examinés ; c'est à dire que le nombre de défauts induits ne semble pas dépendre vraiment des impuretés (OH^- ou Al^{3+}). Il faut signaler pourtant que le rapport de Rayleigh est tout de même légèrement plus élevé dans le type IV que dans les types II et III sans qu'il y ait de relation précise avec la teneur en impuretés, si ce n'est peut-être la présence de chlore.

En assimilant les défauts à une suspension de bâtonnets orientés au hasard dans une matrice solide, nous avons trouvé que leur dimension telle qu'elle peut être évaluée d'après la dissymétrie des indicatrices ne paraît pas non plus dépendre de la présence d'une impureté particulière. Il faudrait la relier plutôt au genre d'irradiation utilisée.

Signalons enfin que les résultats que nous avons obtenus par diffusion de la lumière sont en très bon accord avec ceux que viennent de publier BALE, SHEFLET & GIBBS (18), qui ont examiné la silice irradiée en utilisant la technique de la diffusion des rayons X aux petits angles. Les différentes silices étudiées par ces auteurs correspondent aux types I, III et IV. Les doses d'irradiation reçues par les échantillons varient de $3,1 \times 10^{18}$ n/cm^2 à $2,4 \times 10^{20}$ n/cm^2. Les résultats obtenus montrent que l'importance des dommages induits dans la structure par l'irradiation augmentent avec la dose. Mais aucun modèle sphérique de zones endommagées ne semble s'accorder avec

les résultats expérimentaux. Par contre les résultats sont plus cohérents si l'on donne à ces zones une forme allongée. La distance des liaisons Si-Si est sensiblement réduite, ce qui indique une légère diminution de l'ängle Si-O-Si. Après irradiation on constate aussi une augmentation des fluctuations de la densité, ce qui explique l'élévation du niveau de la diffusion. Cependant les informations obtenues à partir de la diffusion des rayons X aux petits angles ne permettent de déterminer ni la dimension, ni la forme, ni le nombre des centres diffusants existants. D'autre part les auteurs n'ont décelé aucune influence du mode de fabrication ou de la teneur en impuretés sur l'importance des défauts induits par irradiation neutronique dans la silice vitreuse.

6.2. - Guérison des défauts

En ce qui concerne la guérison par traitements thermiques des défauts induits, l'examen de plusieurs types de silice vitreuse ne révèle aucune différence essentielle dans l'énergie d'activation du processus. C'est toujours entre 600° et 800° qu'apparaît la réduction rapide du niveau de la diffusion et ce n'est jamais avant 1000° que la dissymétrie des indicatrices devient proche de l'unité. A ce sujet il faut souligner qu'une valeur voisine de l'unité ne signifie pas que le défaut a disparu. Cela signifie simplement qu'il devient inobservable en diffusion Rayleigh, c'est à dire qu'il est inférieur en dimension à environ $\lambda/10$. Comme on trouve une dissymétrie toujours légèrement supérieure à 1 après des traitements effectués en dessous de 1000°C on peut seulement dire dans ce cas que la longueur des traces laissées par les pointes thermiques est inférieure à 300 Å. Pour observer la guérison complète il faudrait pouvoir apprécier au moins une dimension de 100 Å.

Enfin, une remarque doit être faite au sujet des traitements thermiques appliqués. Nous avons été obligés de faire des traitements cumulatifs à cause du nombre limité des échantillons irradiés, (ce même type de traitement a été aussi employé par W. PRIMAK (10)). On peut craindre que ce genre de traitement influence l'état de l'échantillon pendant le processus de la guérison. Ceci a été observé dans un échantillon du type I, dont le traitement à 1000°C n'avait pas été cumulatif et dont l'état final de guérison semblait être plus avancé que dans un autre cas où le traitement avait été cumulatif. Cette remarque n'est présentée qu'à titre d'information car un nombre plus élevé d'observations aurait dû être réalisé pour que nous puissions en faire état.

Au sujet de la durée des traitements nous avons toujours employé un temps suffisamment long de 24 heures parce que nous pensons que cette durée doit avoir un influence sur le résultat de la guérison.

En effet la théorie de la guérison d'un solide irradié, entreprise dans le cas des métaux, montre que la vitesse de guérison peut avoir des bases établies sur les équations de la cinétique chimique (19), mais jusqu'à présent aucune théorie propre à l'état vitreux n'a été développée à ce sujet. On suppose qu'un défaut a besoin d'un certaine énergie E pour déclencher une réaction qui modifie la contribution du défaut à la variation des propriétés du solide. La fraction des défauts qui ont cette énergie E est donnée par un facteur de Boltzmann $\exp\left(-E/_{kT}\right)$ le taux de la guérison d'une propriété P quelconque est donné par l'expression :

$$\frac{d\,P(T)}{dT} = -\frac{A}{a}\,P^{n}(T) \cdot \exp\left(-E/_{KT}\right) \qquad (1)$$

où : P (T) : est la variable considérée en fonction de la température absolue

A : est une constante qui a les dimensions d'une "fréquence" pour n = 1

n : est "l'ordre de la réaction"

E : l'"énergie d'activation"

K : la constante de Botzmann

Cette équation permet de connaître l'influence de la durée du traitement thermique sur le taux de guérison obtenu.

Si on veut être en accord avec la théorie de la cinétique de la recuisson, il faut admettre que le temps t d'un traitement joue un rôle dans le processus de la guérison, car la température absolue du traitement dépend du temps selon la relation linéaire :

$$T = at + b \qquad (2)$$

Ainsi, l'expression (1) peut être établie en fonction du temps, il vient :

$$\frac{d\,P(t)}{dt} = -A \cdot P^{n}(t) \exp\left(-E/_{KT}\right)$$

Elle indique que le propriété P change après un temps t à une température T (°K). C'est ce qu'ont vérifié expérimentalement W. PRIMAK & H. SZYMANSKI (7) par des mesures de compaction.

VII - CONCLUSIONS

A la dose de quelques 10^{17} n/cm^2, les neutrons rapides créent dans la silice vitreuse des défauts que nous avons étudiés de trois manières :

Par mesure de l'indice de réfraction nous avons évalué la compaction globale subie par les échantillons. Celle-ci dépend linéairement des faibles doses employées. Après traitements thermiques cette compaction se relâche rapidement. Elle devient inobservable à partir de 900°C. Mais cette mesure globale ne donne aucune information sur la nature des régions compactées créées par les pointes thermiques.

Les mesures d'absorption que nous avons faites n'apportent que des renseignements généraux sur les modifications électroniques provoquées par les neutrons. Les bandes d'absorption dépendent beaucoup de la teneur en impuretés des différents verres examinés, mais elles disparaissent totalement dans le visible après traitement à 600°. Nous les avons étudiées essentiellement en vue de corriger les mesures de diffusion lumineuse.

La technique de la diffusion Rayleigh apporte des renseignements plus précis grâce à deux paramètres : le rapport de Rayleigh et la dissymétrie des indicatrices.

a) Le rapport de Rayleigh mesuré à 90° est deux fois plus élevé dans la silice fondue en creuset que dans les autres types de silice, parce que le taux d'impuretés métalliques y est plus important. D'une manière générale ce rapport augmente avec la dose d'irradiation (10^{17} à 10^{19} n/cm^2) et il diminue après traitement thermique d'une façon à peu près semblable pour tous les types de fusion. Il rejoint aux environs de 1000°C la valeur observée dans le verre non-irradié.

Ceci prouve que le nombre des défauts croît avec la dose et qu'il ne dépend pas particulièrement de la teneur des échantillons en impuretés diverses. Mais on ne peut rien dire de précis sur la guérison globale observée.

b) La dissymétrie des indicatrices ne paraît pas varier sensiblement, ni avec la dose d'irradiation, ni avec le type de silice examiné. Au cours des traitements thermiques de guérison, la dissymétrie demeure constante tant que la température ne dépasse pas 600°C. Elle diminue progressivement ensuite et elle disparaît au delà de 1000°C.

Ces résultats signifient que la forme des défauts induits est la même pour tous les types de fusion de la silice et que la dimension des défauts ne dépend en fait que de la nature du rayonnement utilisé, c'est à dire de l'énergie des neutrons rapides. Nous arrivons à cette conclusion que les défauts sont des déchirures du réseau qui s'étendent sur une longueur d'environ 1200 Å. Cette dimension ne commence à se réduire qu'en maintenant le verre à plus de 600°C. Après un traitement à 1000° elle est déjà sûrement inférieure à 300 Å, mais le principe de la méthode utilisée ne permettant pas d'apprécier des dimensions plus petites, nous ne pouvons pas dire si la guérison des dommages est déjà achevée ou bien s'il faut élever la température du traitement jusqu'à l'approche du domaine de transformation du verre pour que toute trace de l'irradiation soit effacée.

REFERENCES

(1) - F. D. MAURER
- Jour. Phys. Chem. Solids
17, Nos 1/2, (1960), p.p. 44-51

(2) - M. GOLDSTEIN
- J. Appl. Phys. - 30 (1959), p. 501
12 (1960), p. 1967

(3) - D. CURIE
- Luminescence Crstalline - Dunod. Editeur
Paris (1960)

(4) - R. BRUCKNER
- Jour. Non-Crystalline Solids
5 n° 3 (1971), p.p. 177-216

(5) - S. LUNGU
- Rev. Roumaine de Physique
10 n° 4 (1965), p.p. 469-474

(6) - L. PROD'HOMME
- Revue d'Optique
36 n° 7 (1957), p. 309

(7) - W. PRIMAK & H. SZYMANSKI
- Phys. Rev.
101 (1956), p. 1268

(8) - G. OSTER
- Chem. Rev. - 43 (1948), p. 319

(9) - L. PROD'HOMME
- Revue d'Optique
32 n° 11 (1953), p. 615

(10) - W. PRIMAK
- Phys. Rev. - 110 (1958), p. 1240

(11) - J. S. LUKESH
- Phys. Rev. - 97 (1955), p. 345

(12) - J. S. van WIERINGEN & A. KATS
- Philips Research Report
12 (1957), p. 423

(13) R. A. WEEKS & E. LEEL
- J. Appl. Phys. - 35 (1964), p. 1932

(14) - J. M. STEVELS
- Verres et Réfractaires
21 n° 4 (1967), p.p. 279-288

(15) - A. ROUX
- Thèse. Lyon 1969

(16) - W. PRIMAK & P. KAMPWIRTH
- J. Appl. Phys. - 39 n° 12 (1968), p. 5651

(17) - W. PRIMAK, L. H. FUCHS & P. DAY
- Phys. Rev. - 92 (1953), p. 1064

(18) - H. D. BALE, P. E. SHEPLER & C. W. GIBBS
- J. Appl. Phys. - 41 n° 1 (1970), p. 241

(19) - B. T. KELLY
- Irradiation Damage to Solids, Chap. 4 :
The Annealing of Irradiation Effects in
Solids. Editeur : PERGAMON PRESS 1966

Tableau -I-

- Propriétés physiques de la silice vitreuse non irradiée -

Type	n_D	d (gr.cm^3)	R_g (cm^{-1})	R_e (cm^{-1})	σ_g	σ_e
I	1,4586 ± 0,0002	2,203	3.10^{-6}	$1,5.10^{-6}$	1,35 ± 0,2	1,1 ± 0,2
II	1,4585 ± 0,0002	2,203	3.10^{-6}	1.10^{-6}	1,0 ± 0,1	1,0 ± 0,1
III	1,4584 ± 0,0002	2,201	3.10^{-6}	1.10^{-6}	1,0 ± 0,1	1,0 ± 0,1
IV	1,4584 ± 0,0002	2,201	3.10^{-6}	1.10^{-6}	1,0 ± 0,1	1,0 ± 0,1

Tableau -II-

-Doses d'irradiation reçues par les échantillons et compaction correspondante.-

Types	I	II	III	IV
Flux Φ (N/cm²)	3,7.10¹⁷ * 1,4.10¹⁸	8,0.10¹⁷ 2,2.10¹⁷ *	2,9.10¹⁷ * 5,6.10¹⁷ * 8,0.10¹⁷	2,8.10¹⁷ * 7,7.10¹⁷ * 10,0.10¹⁷
$\Delta\rho/\rho$	0,317	0,328	0,135 0,307 0,340	0,094 0,290

(*): Doses pour lesquelles les valeurs de $\Delta\rho/\rho$ sont données en %

Tableau -III-

-Variation du rapport de Rayleigh en fonction de la dose selon la méthode utilisée.-

	Méthode (1)		Méthode (2)		Méthode (3)	
Flux Φ (n/cm^2)	R_a (cm^{-1})	R_g (cm^{-1})	R_a (cm^{-1})	R_g (cm^{-1})	R_a (cm^{-1})	R_g (cm^{-1})
$3,8.10^{17}$	3.10^{-6}	7.10^{-6}	4.10^{-6}	9.10^{-6}	8.10^{-6}	12.10^{-6}
$7,7.10^{17}$	5.10^{-6}	14.10^{-6}	8.10^{-6}	24.10^{-6}	15.10^{-6}	24.10^{-6}
$19,0.10^{17}$	8.10^{-6}	22.10^{-6}	13.10^{-6}	34.10^{-6}	28.10^{-6}	43.10^{-6}

Tableau -IV-

- Variation de l'indice de réfraction au cours de la guérison. ($\lambda = 5890$ Å)

	Traitements thermiques - Durée : 24 h.					
Type	Irradié	200°C	400°C	600°C	800°C	1.000°C
I	1,4596	1,4593	1,4592	1,4585	1,4585	1,4585
II	1,4596	1,4593	1,4592	1,4586	1,4584	1,4585
III	1,4594	1,4592	1,4589	1,4584	1,4584	1,4584
IV	1,4594	1,4592	1,4589	1,4588	1,4585	1,4584

(*) : Erreur d'appréciation usuelle : ± 0,0002

Tableau -V.-

-Caractéristiques de la diffusion lumineuse par la rai
verte, au cours de la guérison.-

Type		I_{Ve}	I_{He}	$R'_e.L_e.I_e$	K_e	R_e	σ_e	L(Å)
I	brut	non mesurable	non mesurable	non mesurable	66,0	non mesurable	non mesurable	———
	200°C	" "	" "	" "	50,0	" "	" "	———
	400°C	14.10^{-6}	7.10^{-6}	7.10^{-6}	1,0	7.10^{-6}	" "	———
	600°C	5.10^{-6}	2.10^{-6}	3.10^{-6}	1,0	3.10^{-6}	" "	———
	800°C	4.10^{-6}	1.10^{-6}	3.10^{-6}	1,0	3.10^{-6}	" "	———
	1.000°C	5.10^{-6}	2.10^{-6}	3.10^{-6}	1,0	3.10^{-6}	" "	———
II	brut	$10,5.10^{-6}$	6.10^{-6}	$4,5.10^{-6}$	3,3	15.10^{-6}	1,25	1.100
	200°C	11.10^{-6}	6.10^{-6}	5.10^{-6}	2,6	13.10^{-6}	1,3	1.100
	400°C	13.10^{-6}	7.10^{-6}	6.10^{-6}	1,0	6.10^{-6}	1,3	1.100
	600°C	9.10^{-6}	$0,5.10^{-6}$	$2,5.10^{-6}$	1,0	$3,5.10^{-6}$	1,4	1.100
	800°C	2.10^{-6}	0.10^{-6}	2.10^{-6}	1,0	2.10^{-6}	1,3	750
	1.000°C	1.10^{-6}	0.10^{-6}	1.10^{-6}	1,0	1.10^{-6}	1,0	<300
III	brut	15.10^{-6}	8.10^{-6}	10.10^{-6}	1,05	$10,5.10^{-6}$	1,3	1.300
	200°C	17.10^{-6}	8.10^{-6}	9.10^{-6}	1,0	9.10^{-6}	1,3	1.100
	400°C	8.10^{-6}	3.10^{-6}	5.10^{-6}	1,0	5.10^{-6}	1,3	1.100
	600°C	3.10^{-6}	$0,5.10^{-6}$	$2,5.10^{-6}$	1,0	$2,5.10^{-6}$	1,4	1.100
	800°C	1.10^{-6}	0.10^{-6}	1.10^{-6}	1,0	1.10^{-6}	1,35	600
	1.000°C	2.10^{-6}	1.10^{-6}	1.10^{-6}	1,0	1.10^{-6}	1,0	<300
IV	brut	29.10^{-6}	$13,5.10^{-6}$	$13,5.10^{-6}$	1,1	15.10^{-6}	1,2	1.100
	200°C	20.10^{-6}	10.10^{-6}	10.10^{-6}	1,0	10.10^{-6}	1,2	1.100
	400°C	11.10^{-6}	6.10^{-6}	5.10^{-6}	1,0	5.10^{-6}	1,3	1.100
	600°C	4.10^{-6}	1.10^{-6}	3.10^{-6}	1,0	3.10^{-6}	1,4	1.100
	800°C	1.10^{-6}	0.10^{-6}	1.10^{-6}	1,0	1.10^{-6}	1,3	750
	1.000°C	1.10^{-6}	0.10^{-6}	1.10^{-6}	1,0	1.10^{-6}	1,0	<300

Tableau - VI -

- Caractéristiques de la diffusion lumineuse par la raie bleue, au cours de la guérison. -

Type		I_{V_B}	I_{H_B}	$R'_B = I_V - I_H$	K_B	R_B	σ_B	L (Å)
I	brut	non mesurable	non mesurable	non mesurable	50,0	non mesurable	non mesurable	———
	200°C	" "	" "	" "	17,0	" "	" "	———
	400°C	18.10^{-6}	3.10^{-6}	15.10^{-6}	4,0	15.10^{-6}	" "	———
	600°C	8.10^{-6}	2.10^{-6}	6.10^{-6}	4,0	6.10^{-6}	" "	———
	800°C	7.10^{-6}	2.10^{-6}	5.10^{-6}	4,0	5.10^{-6}	" "	———
	1.000°C	8.10^{-6}	1.10^{-6}	7.10^{-6}	4,0	7.10^{-6}	" "	———
II	brut	$7,5.10^{-6}$	$1,5.10^{-6}$	6.10^{-6}	3,0	18.10^{-6}	1,5	1.100
	200°C	$9,0.10^{-6}$	$2,0.10^{-6}$	7.10^{-6}	2,2	15.10^{-6}	1,4	1.100
	400°C	$16,0.10^{-6}$	$2,0.10^{-6}$	14.10^{-6}	4,0	14.10^{-6}	1,5	1.100
	600°C	$6,5.10^{-6}$	$1,0.10^{-6}$	$5,5.10^{-6}$	4,0	$5,5.10^{-6}$	1,4	1.100
	800°C	$4,0.10^{-6}$	$0,5.10^{-6}$	$3,5.10^{-6}$	4,0	$3,5.10^{-6}$	1,2	750
	1.000°C	$3,5.10^{-6}$	$0,5.10^{-6}$	3.10^{-6}	4,0	3.10^{-6}	4,0	< 300
III	brut	24.10^{-6}	5.10^{-6}	19.10^{-6}	4,05	20.10^{-6}	1,6	1.300
	200°C	15.10^{-6}	2.10^{-6}	13.10^{-6}	4,0	13.10^{-6}	1,5	1.100
	400°C	14.10^{-6}	1.10^{-6}	13.10^{-6}	4,0	13.10^{-6}	1,5	1.100
	600°C	8.10^{-6}	1.10^{-6}	7.10^{-6}	4,0	7.10^{-6}	1,4	1.100
	800°C	3.10^{-6}	$0,5.10^{-6}$	$2,5.10^{-6}$	4,0	$2,5.10^{-6}$	1,08	600
	1.000°C	3.10^{-6}	$0,5.10^{-6}$	$2,5.10^{-6}$	4,0	$2,5.10^{-6}$	4,0	< 300
IV	brut	30.10^{-6}	8.10^{-6}	22.10^{-6}	1,1	24.10^{-6}	1,5	1.100
	200°C	22.10^{-6}	4.10^{-6}	18.10^{-6}	1,0	18.10^{-6}	1,5	1.100
	400°C	$13,5.10^{-6}$	$1,5.10^{-6}$	12.10^{-6}	1,0	12.10^{-6}	1,5	1.100
	600°C	7.10^{-6}	1.10^{-6}	6.10^{-6}	1,0	6.10^{-6}	1,4	1.100
	800°C	4.10^{-6}	$0,5.10^{-6}$	$3,5.10^{-6}$	1,0	$3,5.10^{-6}$	1,2	750
	1.000°C	$2,5.10^{-6}$	$0,5.10^{-6}$	2.10^{-6}	4,0	2.10^{-6}	4,0	< 300

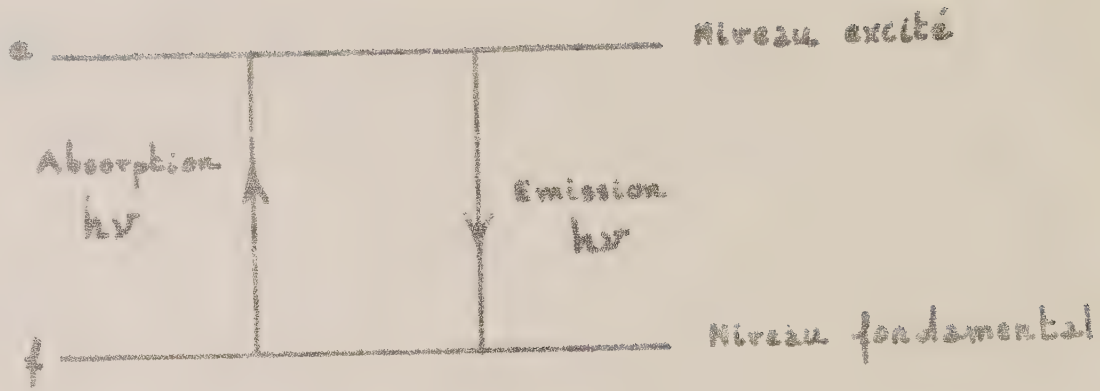

Fig. 1. - Schéma énergétique d'une fluorescence
(D'après D.CURIE [3])

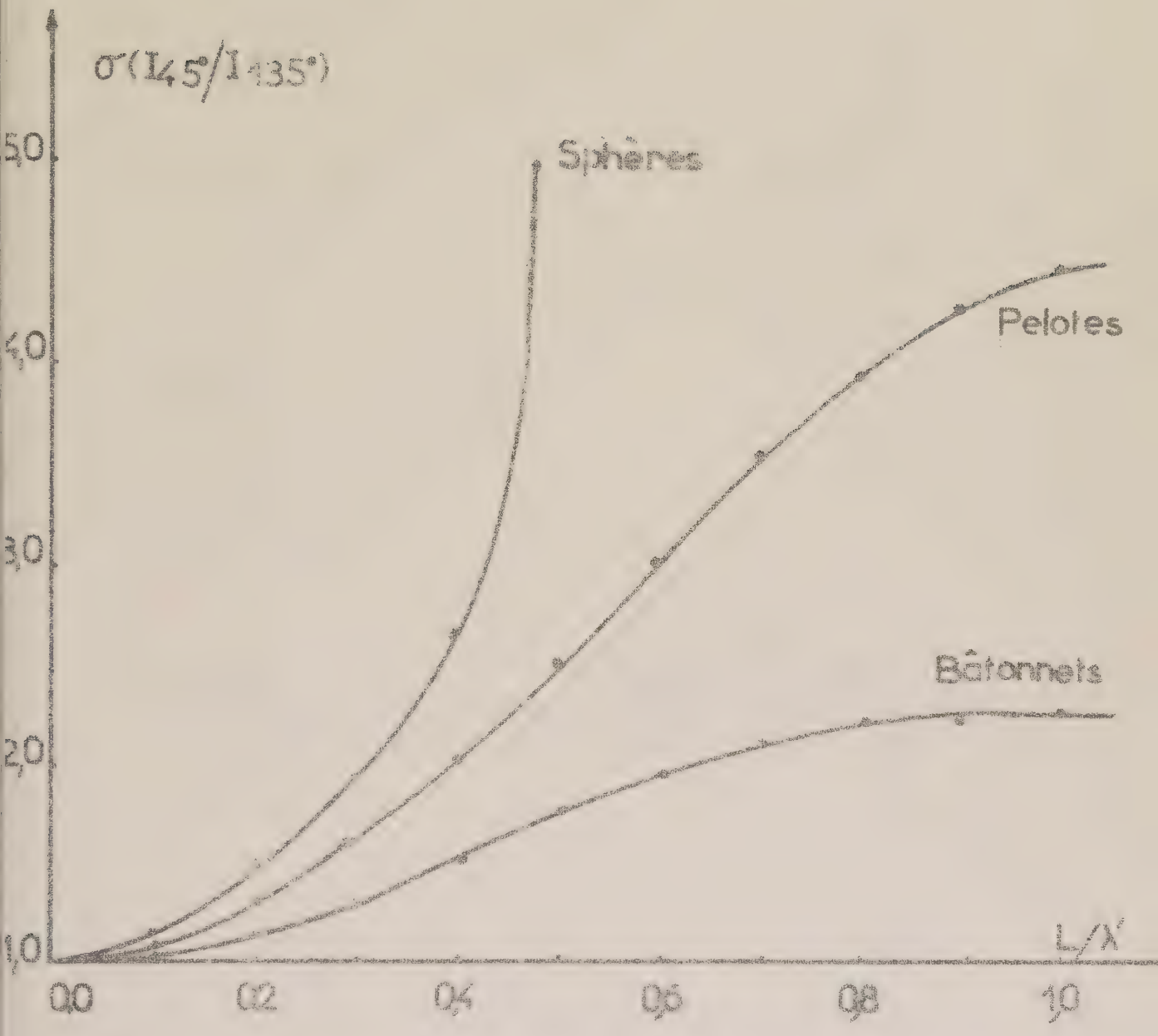

Fig. 2 - Dissymétrie en fonction de L/λ', pour des sphères, des pelotes et des bâtonnets d'indice de réfraction relatif ~ 1,0
[D'après G. OSTER (8)]

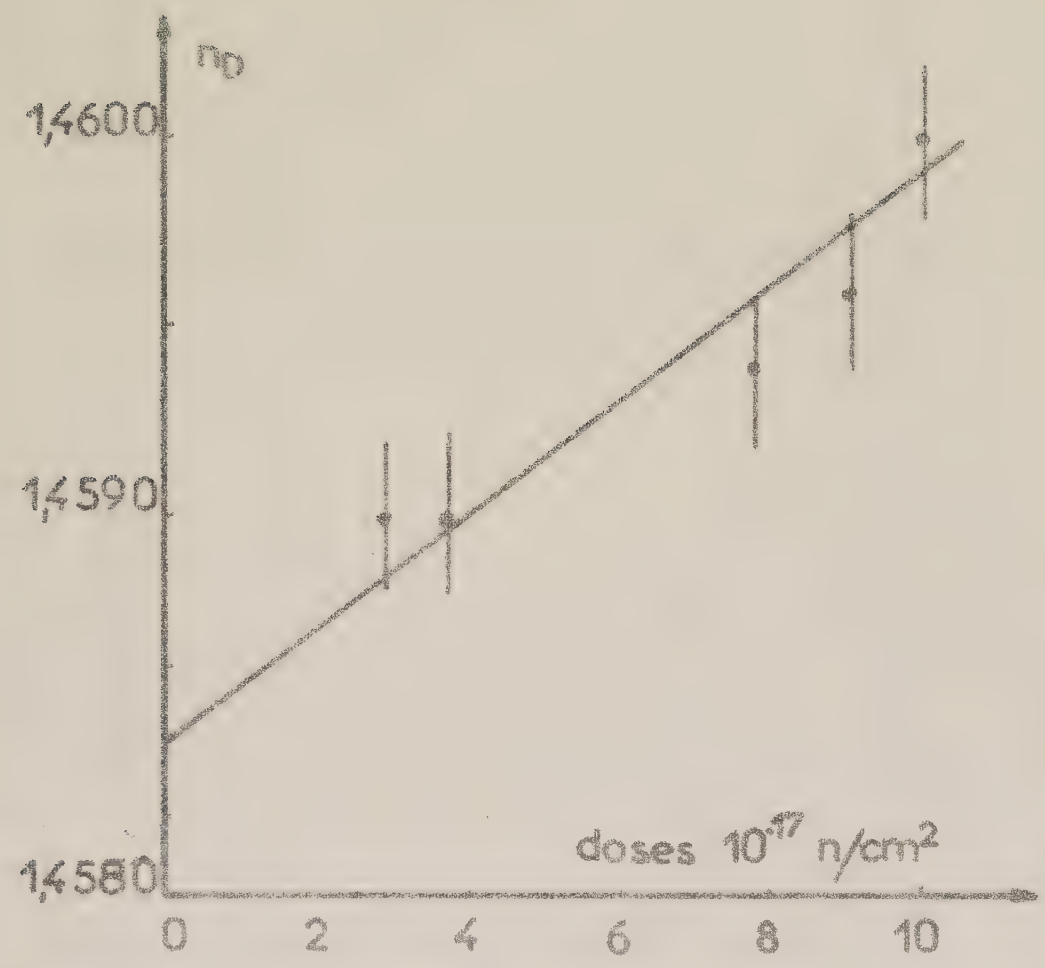

Fig. 3. – Influence de la dose d'irradiation sur l'indice de réfraction de la silice vitreuse. (Type IV)

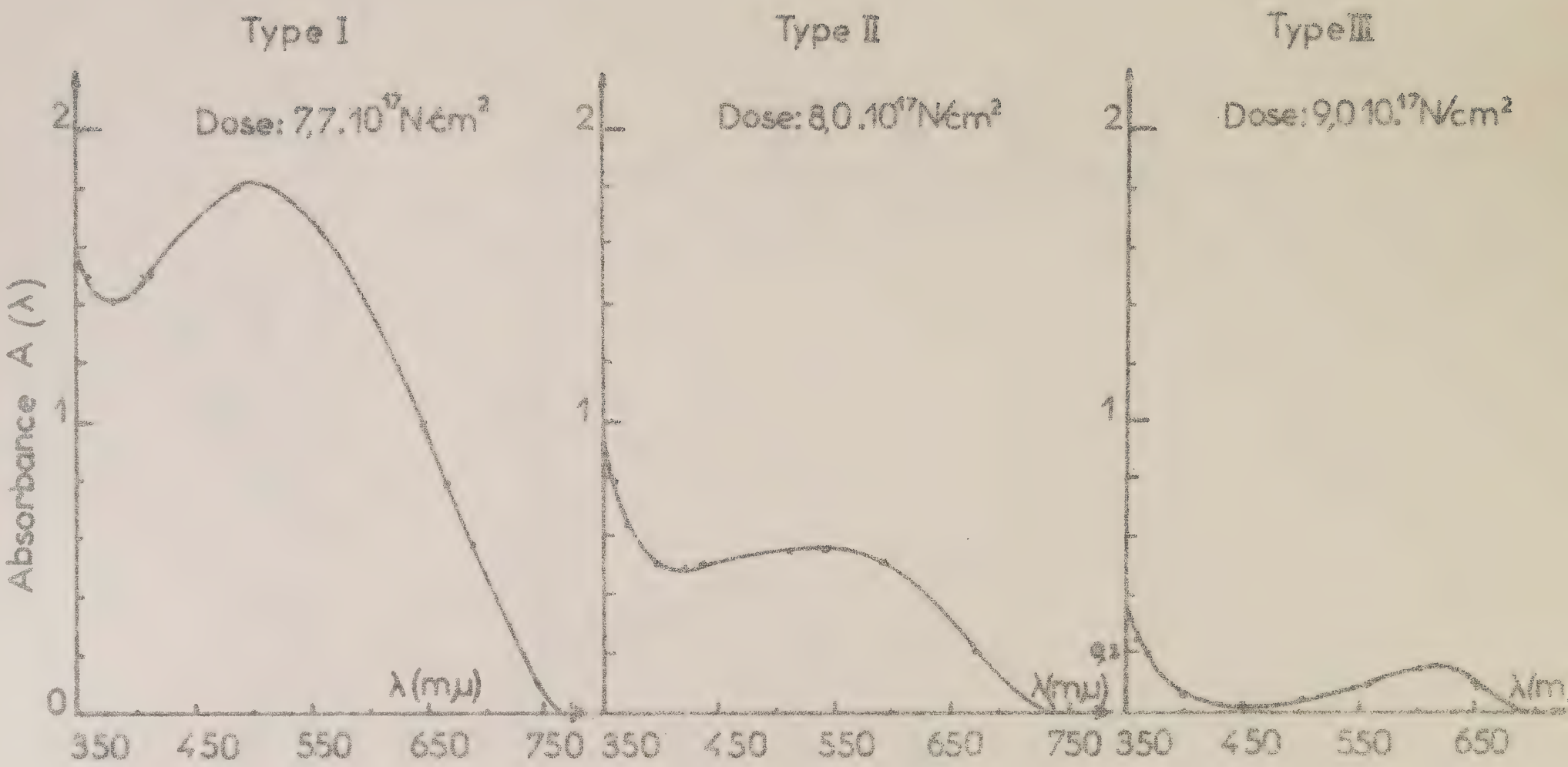

Fig. 4 - Variation du spectre d'absorption dans le visible selon les différents types de silice vitreuse.

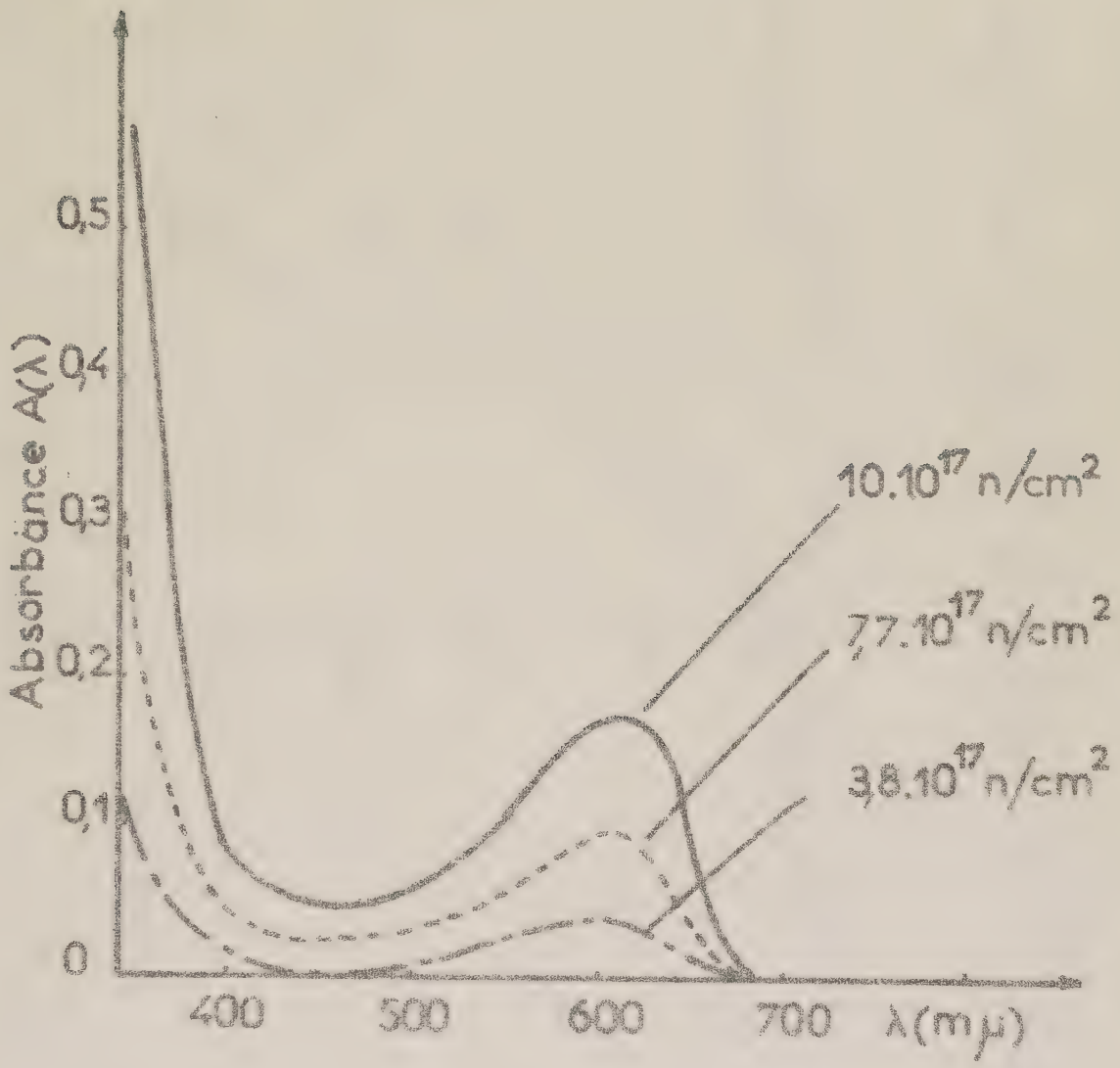

Fig. 5. - Variation du spectre d'absorptio
avec la dose d'irradiation.
(Type IV)

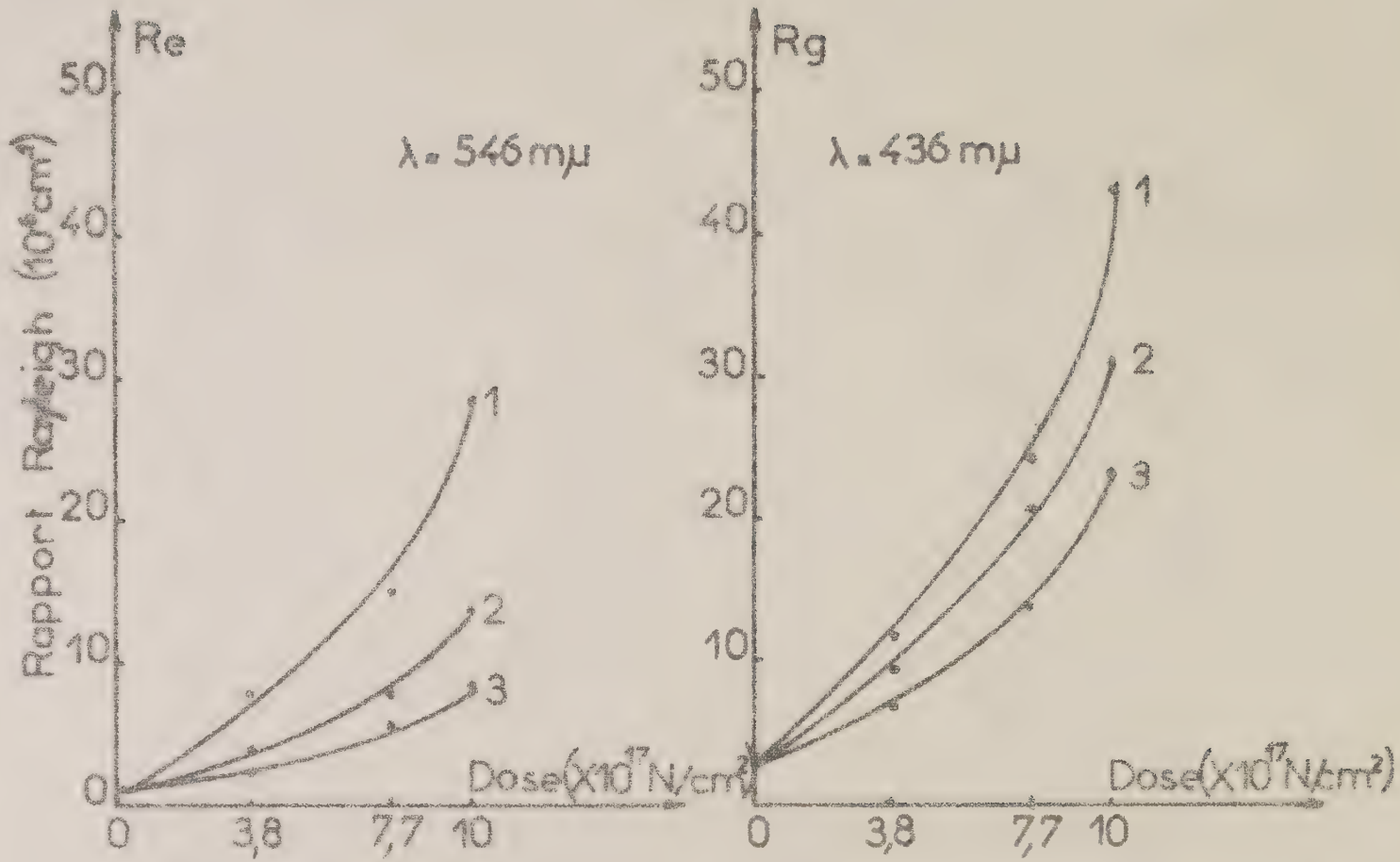

Fig. 6. - Variation du rapport de Rayleigh avec la dose d'irradiation. - (Silice type IV)

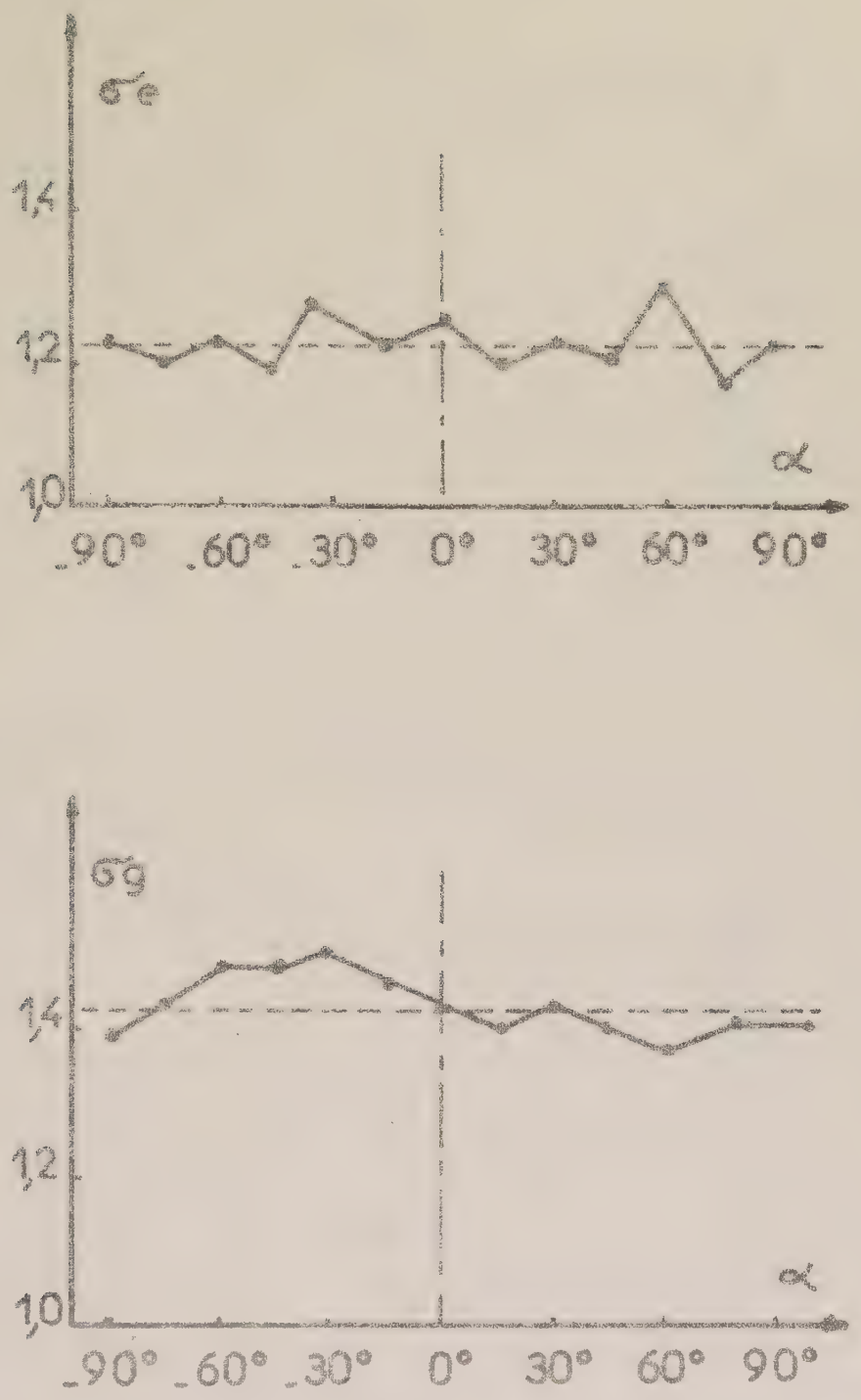

Fig. 7 - Variation de la dissymétrie σ, avec l'angle d'orientation α de l'échantillon.-(Type IV).

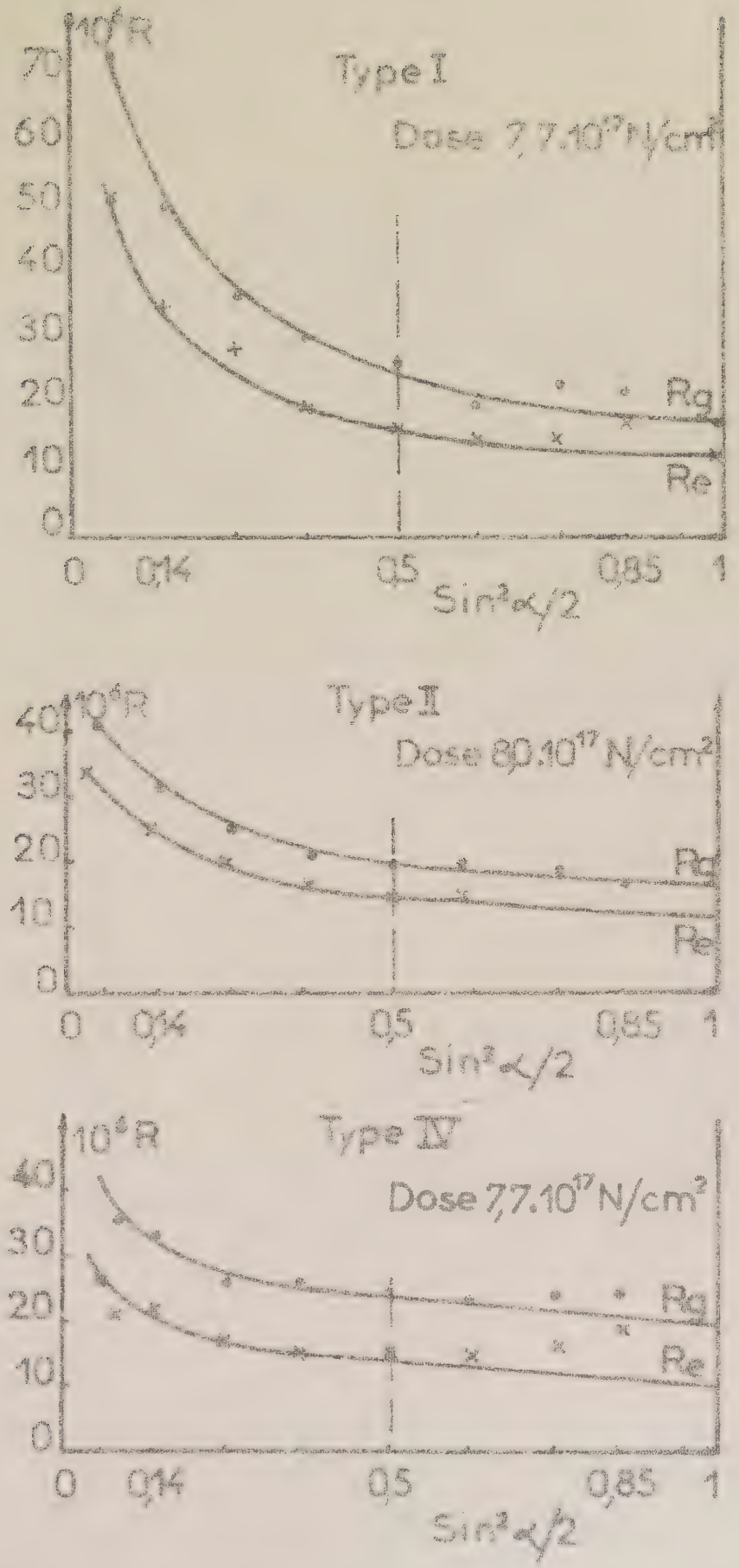

Fig. 8. – Indicatrices de diffusion pour trois types de silice vitreuse à l'état irradié

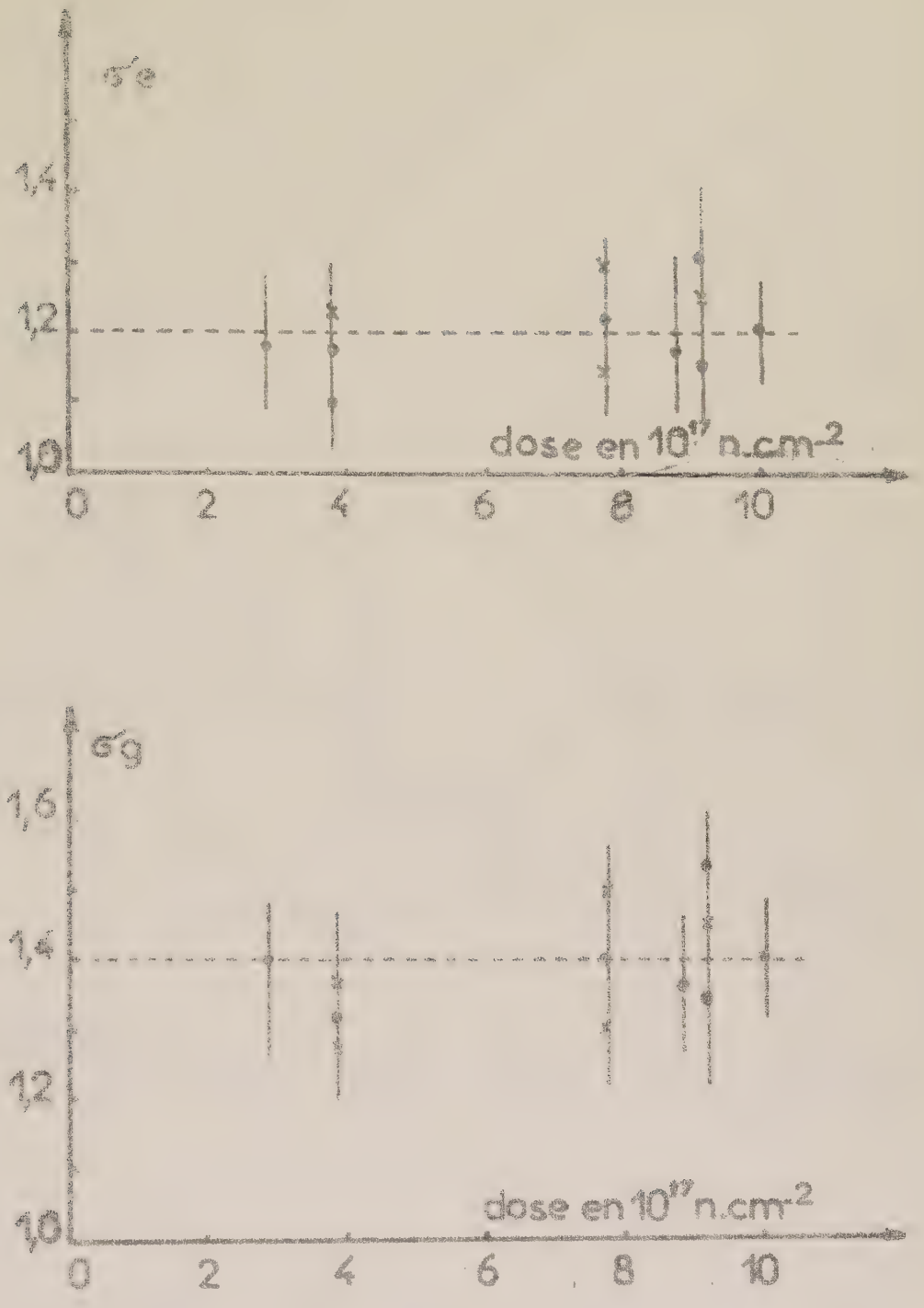

Fig. 9 - Variation de la dissymetrie σ, avec la dose d'irradiation
(x : type III - • : type IV)

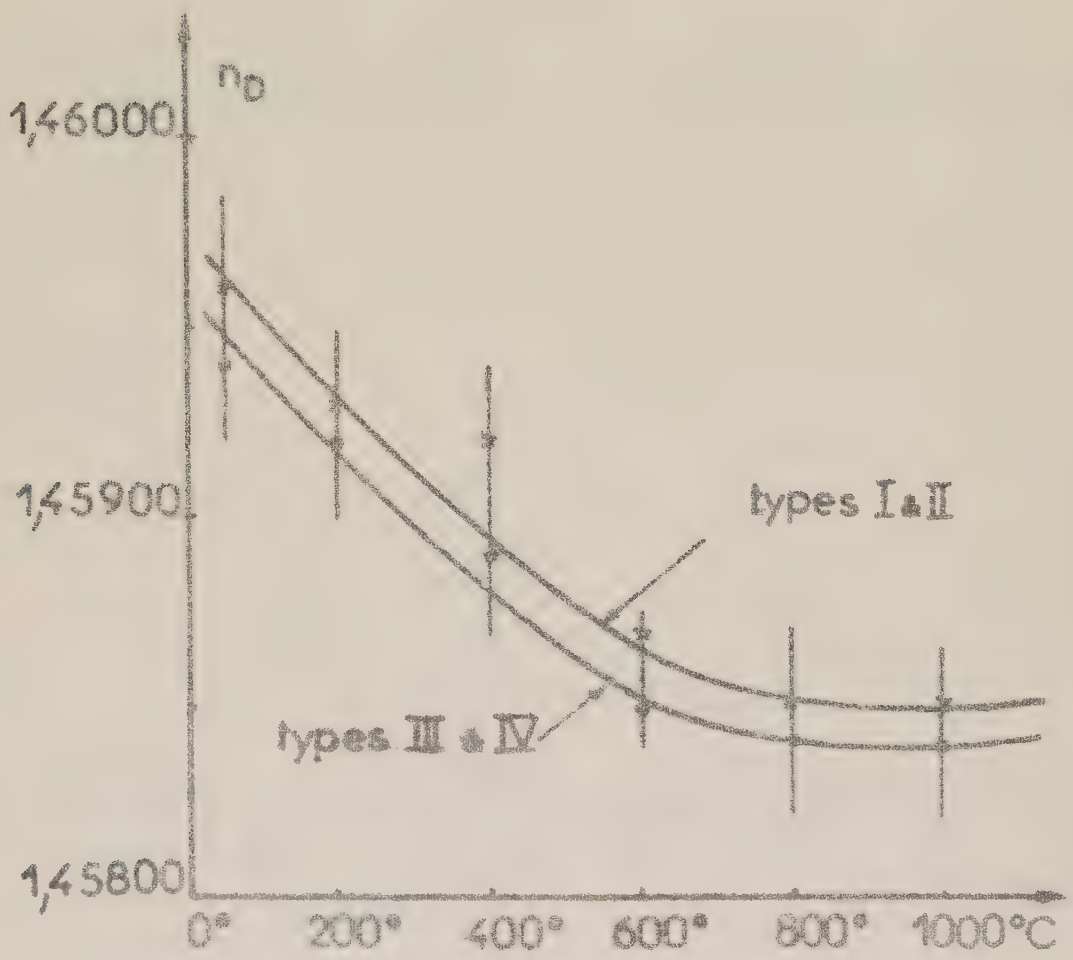

Fig 10. - Variation de l'indice de réfraction avec la température du traitement thermique.

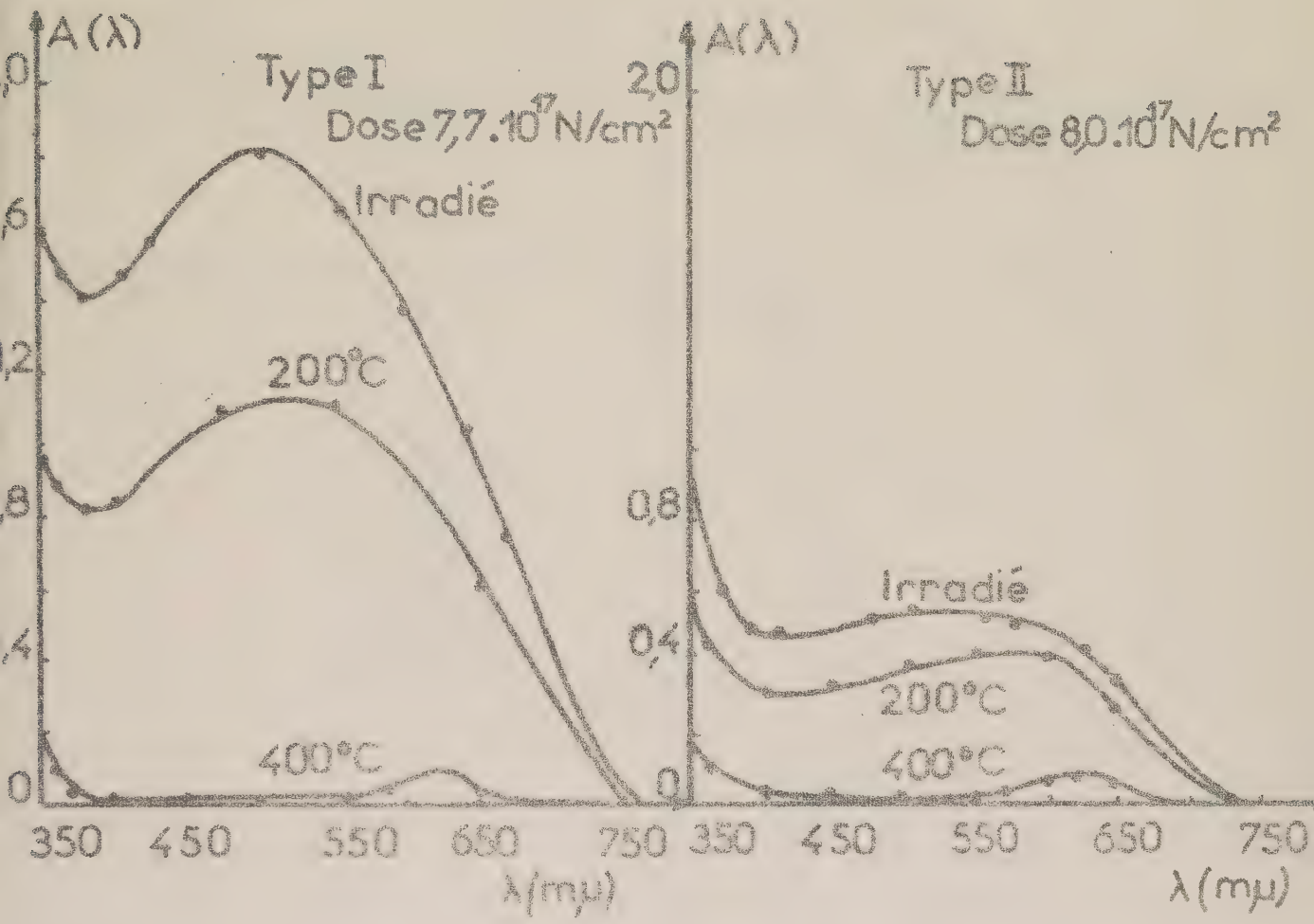

Fig. 11. - Variation du spectre d'absorption au cours de la guérison. -

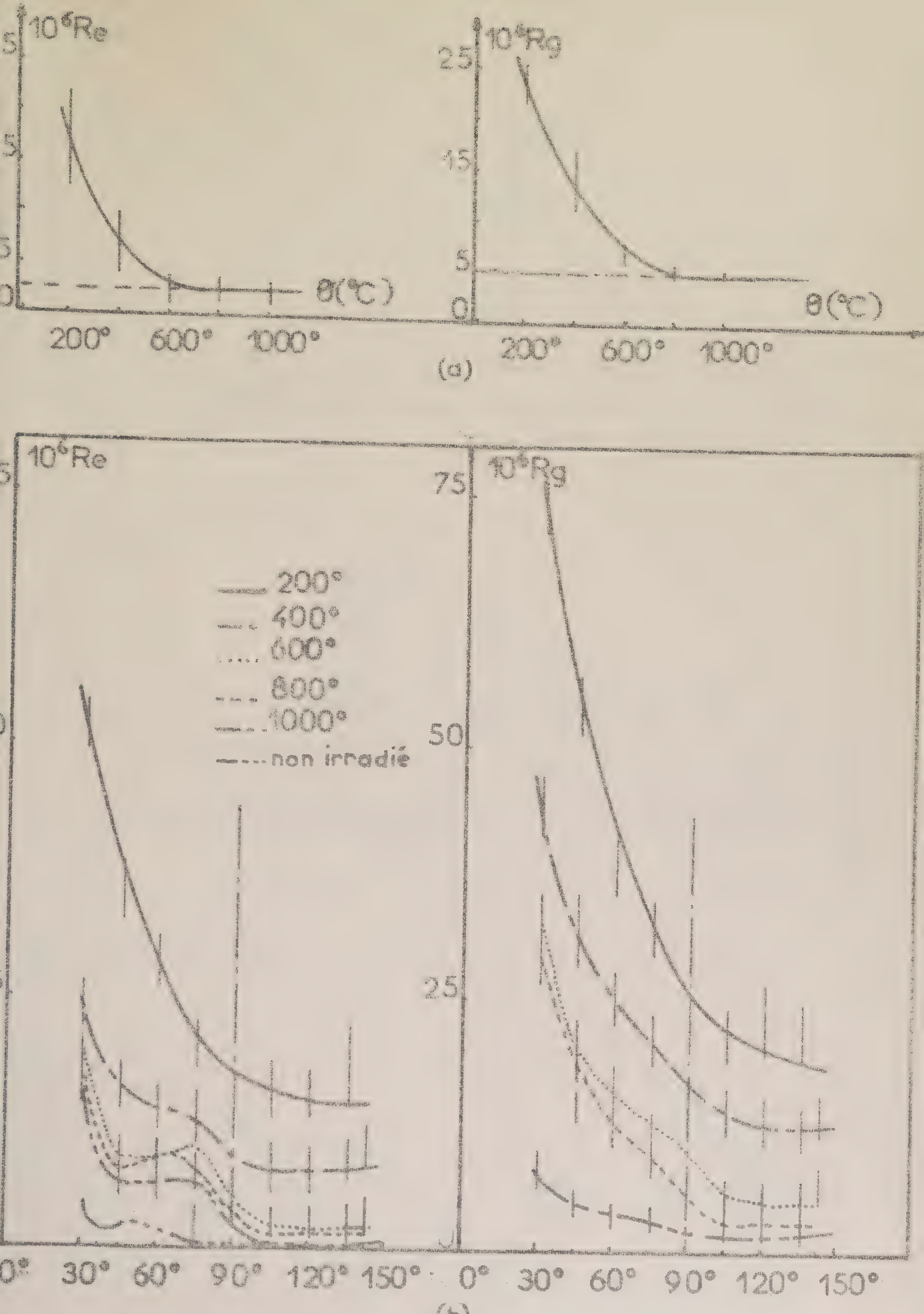

Fig. 12. - Guérison observée par la diffusion lumineuse (Silice type I).

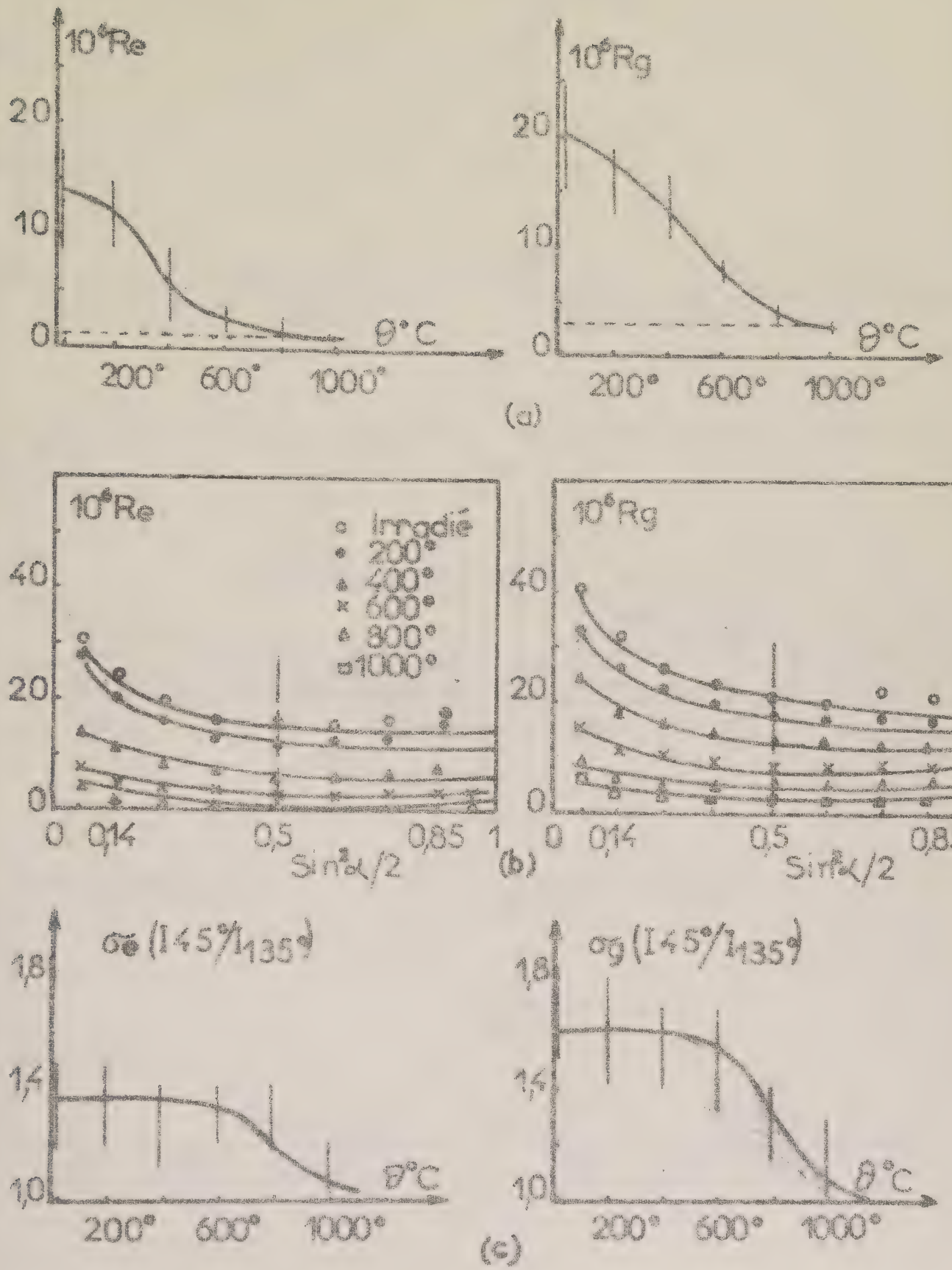

Fig. 13 - Guérison observée par la diffusion lumineuse (Silice type II).

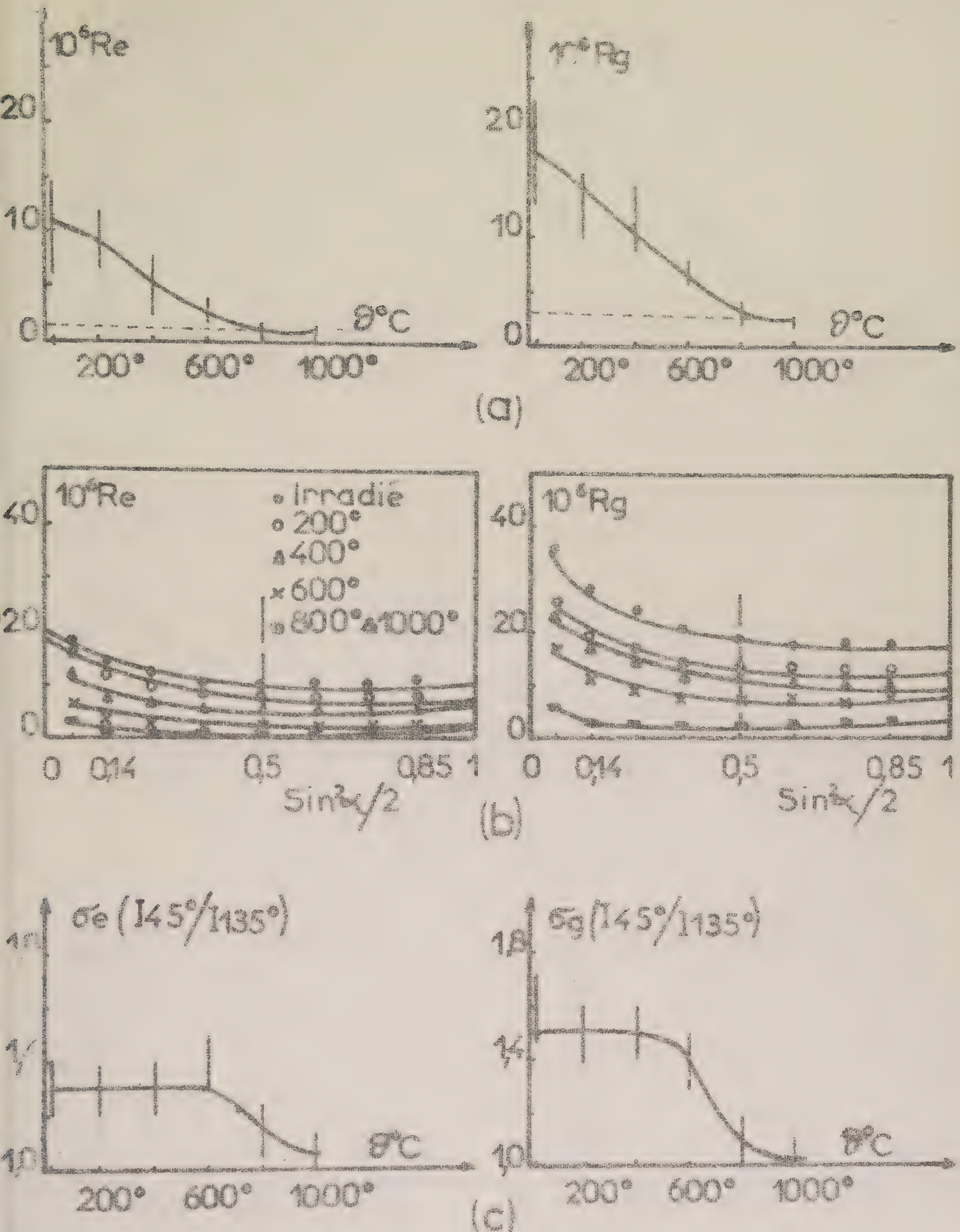

Fig. 14. - Guérison observée par la diffusion lumineuse. - (type III).

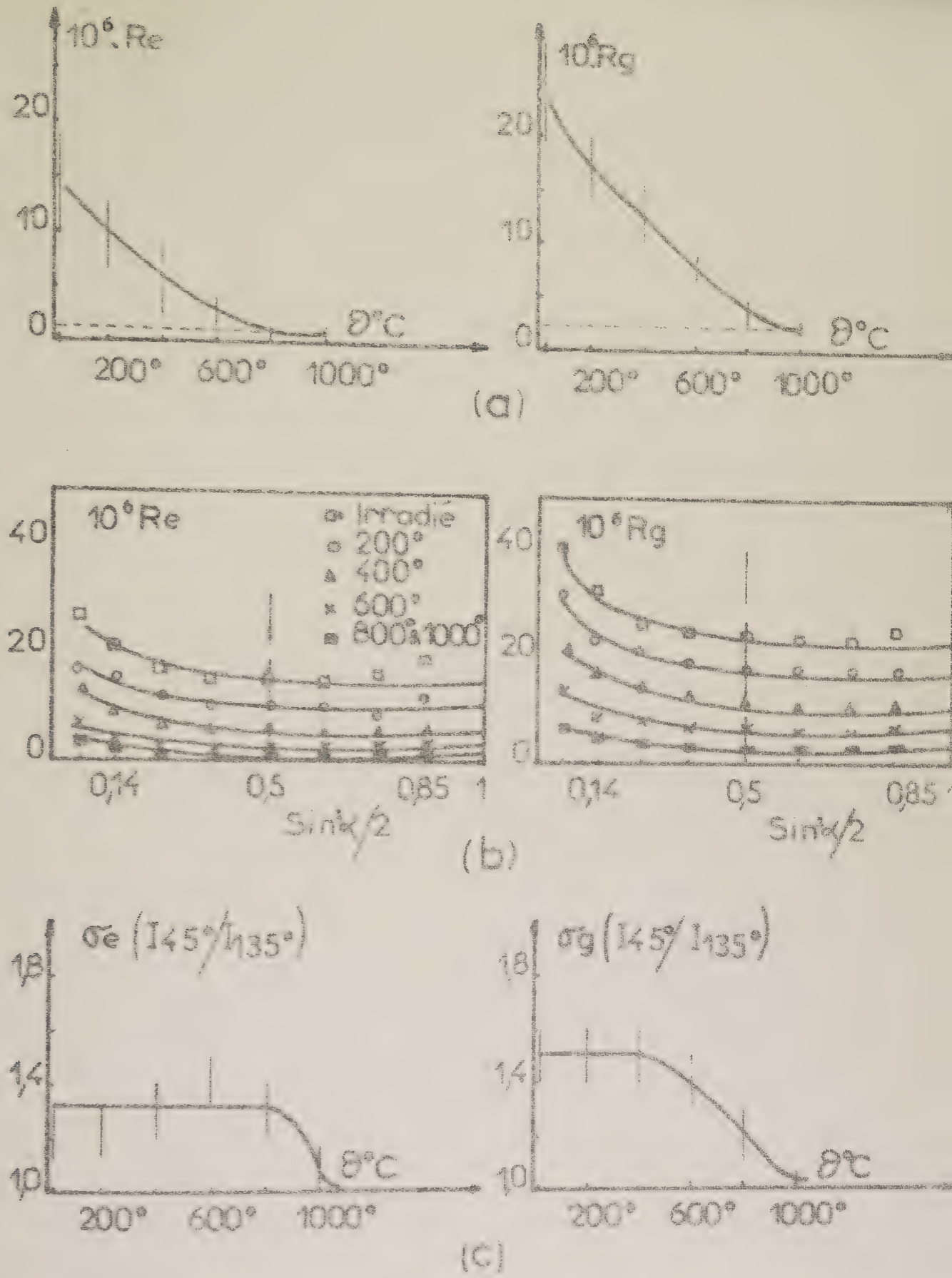

Fig. 15 - Guérison observée par la diffusion lumineuse. - (type IV).

adémie de Paris

ERSITE de PARIS VI
i Saint Bernard - Paris 5

CE DE LA SCOLARITE
s Enseignements du 3e Cycle

6.25.25 et 325.12.21

PERMIS D'IMPRIMER

DOCTORAT : d' UNIVERSITE

~~ESSEX~~ :

NOM : Madame FERNANDEZ Maria Luisa

Prénoms : Maria Luisa

née le 3 Août 1944 à MADRID Espagne ~~Dept~~ :

1ère THESE : Etude par diffusion de la lumière de la silice vitreuse irradiée aux neutrons

2e THESE (Propositions faites par l'Université) :

ACADEMIE DE PARIS
UNIVERSITE
PARIS
VI

Vu et Approuvé

PARIS, le 21 Novembre 1972

Le Président

de l'Université de PARIS VI

A. HERPIN